TOME 19 N° 12 DÉCEMBRE 1958

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

ÉNERGIE DE ROTATION DES MOLÉCULES LINÉAIRES — CORRECTIONS DU QUATRIÈME ORDRE. I.

Par J. RAMADIER et G. AMAT,

Laboratoire de Chimie Physique de la Faculté des Sciences de Paris.

Résumé. — On se propose de calculer l'énergie de rotation du 4e ordre des molécules linéaires en utilisant l'hamiltonien deux fois transformé $h_4^\dagger$. Dans ce premier article, on calcule le coefficient H_e du terme $hcH_e\,[J(J+1) - l^2]^3$.

Abstract. — The authors compute the 4th order rotation energy of linear molecules, using the twice transformed Hamiltonian $h_4^\dagger$. In this first paper a formula is given for the coefficient H_e of the term $hcH_e\,[J(J+1) - l^2]^3$.

Introduction. — L'hamiltonien de vibration-rotation d'une molécule polyatomique étant développé en série par rapport aux coordonnées normales [2] :

$$H = H_0 + \lambda H_1 + \lambda^2 H_2 + \lambda^3 H_3 + \lambda^4 H_4 + \ldots \quad (1)$$

les corrections d'ordre quatre à l'énergie de vibration-rotation peuvent s'exprimer en fonction des éléments matriciels de l'opérateur $h_4^\dagger$ calculé par Amat et Nielsen [5] et défini par les équations :

$$H^\dagger = \mathcal{T}\, THT^{-1}\, \mathcal{T}^{-1} \quad (2)$$

$$H^\dagger = H_0 + \lambda h_1^\dagger + \lambda^2 h_2^\dagger + \lambda^3 h_3^\dagger + \lambda^4 h_4^\dagger + \ldots \quad (3)$$

Les opérateurs $T = e^{i\lambda S}$ et $\mathcal{T} = e^{i\lambda^2 \mathcal{S}}$ (où S et $\mathcal{S}$ sont hermitiens) définissent deux transformations de contact auxquelles on soumet successivement l'hamiltonien H. Ces transformations sont choisies de telle sorte que l'opérateur $H_0 + \lambda h_1^\dagger + \lambda^2 h_2^\dagger$ soit diagonal par rapport à tous les nombres quantiques v_s (nombres quantiques principaux associés aux diverses vibrations normales caractérisées par l'indice s).

$h_4^\dagger$ dépend de deux types d'opérateurs :

D'une part, des opérateurs rotationnels : P_α, P_β, ... (avec $\alpha, \beta, \ldots = x, y,$ ou z), composantes du moment angulaire total **P** suivant l'un des axes principaux d'inertie de la molécule.

D'autre part, des opérateurs vibrationnels : coordonnées normales sans dimension $q_{s\sigma}$ et moments conjugués $p_{s\sigma}$ (l'indice σ permet de caractériser les diverses composantes d'une même vibration dégénérée : σ pouvant prendre les valeurs 1 ou 1, 2 ou 1, 2, 3 suivant que la vibration s est non dégénérée, doublement dégénérée ou triplement dégénérée).

On peut considérer $h_4^\dagger$ comme une somme de deux termes : $h_{4V}^\dagger$ qui ne contient que des opérateurs vibrationnels et $h_{4R}^\dagger$ qui contient à la fois des opérateurs rotationnels et vibrationnels.

$$\left.\begin{aligned} h_4^\dagger &= h_{4R}^\dagger + h_{4V}^\dagger \\ h_{4R}^\dagger &= h_{4RA}^\dagger + h_{4RB}^\dagger + h_{4RC}^\dagger \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

$h_{4RA}^\dagger$, $h_{4RB}^\dagger$ et $h_{4RC}^\dagger$ sont respectivement des polynomes homogènes de degré six, quatre et deux par rapport aux opérateurs rotationnels. Ajoutons que $h_{4RA}^\dagger$ est indépendant des opérateurs vibrationnels, que $h_{4RB}^\dagger$ est homogène de degré deux, et que $h_{4RC}^\dagger$ contient à la fois des termes de degré quatre et de degré zéro par rapport à ces mêmes opérateurs vibrationnels.

Nous ne nous occuperons dans le présent article que du premier terme de h_{4R}. Il s'écrit :

$$h_{4RA}^\dagger = \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta} {}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)} Z\, P_\alpha P_\beta P_\gamma P_\delta P_\varepsilon P_\eta \quad (5)$$

et conduit à introduire dans l'expression de l'énergie de vibration-rotation un terme correctif indépendant des nombres quantiques vibrationnels et de degré six par rapport aux nombres quantiques rotationnels.

Définition du coefficient ${}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)} Z$. — Le calcul général développé dans les références [2], [3], [4]

et [5] permet de définir ${}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Z$ au moyen des équations suivantes :

$$
\begin{aligned}
{}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Z &= {}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Y + \frac{1}{2}\,{}^{[\alpha\beta\gamma,\delta\varepsilon\eta]}\gamma \\
{}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Y &= {}^{[\alpha\beta,\gamma\delta\varepsilon\eta]}\varpi \\
{}^{[\alpha\beta\gamma,\delta\eta\varepsilon]}\gamma &= \frac{1}{2}\left({}^{\alpha\beta\gamma,\delta\varepsilon\eta}\gamma + {}^{\delta\varepsilon\eta,\alpha\beta\gamma}\gamma\right) \\
{}^{[\alpha\beta,\gamma\delta\varepsilon\eta]}\varpi &= \frac{1}{2}\left({}^{\alpha\beta,\gamma\delta\varepsilon\eta}\varpi + {}^{\varepsilon\eta,\alpha\beta\gamma\delta}\varpi\right) \\
{}^{\alpha\beta\gamma,\delta\varepsilon\eta}\gamma &= -\hbar\sum_m {}^{\delta\varepsilon\eta}\mathcal{S}_m\,{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}Y^m \\
{}^{\alpha\beta,\gamma\delta\varepsilon\eta}\varpi &= \hbar\sum_m {}^{\alpha\beta}S^m\,{}^{\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(3)}T_m \\
{}^{\delta\varepsilon\eta}\mathcal{S}_m &= \frac{1}{\lambda_m^{1/2}}\,{}^{\delta\varepsilon\eta}_{(2)}Y^m \qquad (6) \\
{}^{\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(3)}T_m &= \frac{1}{2}\,{}^{[\gamma,\delta\varepsilon\eta]}_{(U)}\theta_m + \frac{1}{2}\,{}^{[\gamma\delta,\varepsilon\eta]}_{(U)}\mu_m \\
{}^{[\gamma,\delta\varepsilon\eta]}_{(U)}\theta_m &= \frac{1}{2}\left({}^{\gamma,\delta\varepsilon\eta}_{(U)}\theta_m + {}^{\eta,\gamma\delta\varepsilon}_{(U)}\theta_m\right) \\
{}^{[\gamma\delta,\varepsilon\eta]}_{(U)}\mu_m &= \frac{1}{2}\left({}^{\gamma\delta,\varepsilon\eta}_{(U)}\mu_m + {}^{\varepsilon\eta,\gamma\delta}_{(U)}\mu_m\right) \\
{}^{\gamma,\delta\varepsilon\eta}_{(U)}\theta_a &= -\hbar\sum_{\substack{n \\ s_m \neq s_n}} {}^{\gamma}S_{mn}\,{}^{\delta\varepsilon\eta}_{(2)}U^n \\
{}^{\gamma\delta,\varepsilon\eta}_{(U)}\mu_m &= \hbar\sum_n {}^{\gamma\delta}S^n\,{}^{\varepsilon\eta}_{(2)}U_{mn}(1+\delta_{mn})
\end{aligned}
$$

avec (¹) :

$$
\begin{aligned}
{}^{\alpha\beta}S^m &= \frac{a_m^{\alpha\beta}}{2I_\alpha I_\beta\,\hbar^{3/2}\,\lambda_m^{3/4}} \\
{}^{\alpha}S_{mn} &= \frac{\zeta^\alpha_{mn}(\lambda_m+\lambda_n)}{(\lambda_m-\lambda_n)\,I_\alpha(\lambda_m\lambda_n)^{1/4}}.
\end{aligned}
\qquad (7)
$$

Les symboles

$$
{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}Y^m, \qquad {}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}U^m, \qquad {}^{\alpha\beta}_{(2)}U_{mn}
$$

qui figurent également dans les équations (6) désignent des coefficients des hamiltoniens transformés du second ordre : h'_2 et h'''_2 (voir référence [3]). On trouvera dans la référence [6] des formules explicites pour ces divers coefficients.

En effectuant les substitutions définies par les relations (6), on obtient :

$$
\begin{aligned}
{}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Z = &-\frac{\hbar^2}{8}\sum_{\substack{mn \\ s_m\neq s_n}}\Big\{{}^{\alpha\beta}S^m\left({}^{\gamma}S_{mn}\,{}^{\delta\varepsilon\eta}_{(2)}U^m + {}^{\eta}S_{mn}\,{}^{\gamma\delta\varepsilon}_{(2)}U^n\right) \\
&+ {}^{\varepsilon\eta}S^m\left({}^{\alpha}S_{mn}\,{}^{\beta\gamma\delta}_{(2)}U^n + {}^{\delta}S_{mn}\,{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}U^n\right)\Big\} \\
&+\frac{h^2}{8}\sum_{mn}\Big\{{}^{\alpha\beta}S^m\left({}^{\gamma\delta}S^n\,{}^{\varepsilon\eta}_{(2)}U_{mn} + {}^{\varepsilon\eta}S^n\,{}^{\gamma\delta}_{(2)}U_{mn}\right) \qquad (8) \\
&+ {}^{\varepsilon\eta}S^m\left({}^{\alpha\beta}S^n\,{}^{\gamma\delta}_{(2)}U_{mn} + {}^{\gamma\delta}S^n\,{}^{\alpha\beta}_{(2)}U_{mn}\right)\Big\}(1+\delta_{mn}) \\
&-\frac{\hbar}{2}\sum_m\frac{1}{\lambda_m^{1/2}}\,{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}Y^m\,{}^{\delta\varepsilon\eta}_{(2)}Y^m.
\end{aligned}
$$

(¹) Les notations utilisées dans les formules (7) et dans la suite de l'article sont celles de H. H. Nielsen [1]. L'appendice de la référence [6] contient un rappel de leur définition.

Cas particulier des molécules linéaires. — *a*) VALEUR DES COEFFICIENTS S, ${}_{(2)}Y$, ${}_{(2)}U$. — Sayvetz [7] a montré que, dans une molécule linéaire, les composantes du moment angulaire total et du moment angulaire interne suivant l'axe de la molécule sont égales :

$$
P_z - p_z = 0. \qquad (9)
$$

Il en résulte que l'hamiltonien de vibration-rotation contient des opérateurs P_α, P_β, ... et p_α, p_β, ... pour lesquelles les indices α, β ... ne peuvent prendre que les valeurs x ou y. La même restriction (α, $\beta \equiv x$ ou y) est valable pour les constantes d'interaction $a^{\alpha\beta}_{s\sigma}$, $A^{\alpha\beta}_{s\sigma s'\sigma'}$, $A'^{\alpha\beta}_{s\sigma,s'\sigma'}$, $\zeta^\alpha_{s\sigma,s'\sigma'}$, intervenant dans les coefficients de l'hamiltonien. Une étude plus approfondie de ces constantes d'interaction [12] montre que les seuls coefficients du type (7) susceptibles d'intervenir dans le calcul sont :

$$
\left\{
\begin{aligned}
{}^{xx}S^s &= {}^{yy}S^s = \frac{a_s^{xx}}{2\hbar^{3/2}I^2_{(e)}\lambda_s^{3/4}} \\
{}^{x}S_{st_2} &= {}^{x}S_{t_2 s} = -{}^{y}S_{st_1} \qquad (10) \\
&= -{}^{y}S_{t_1 s} = \frac{\zeta^x_{st_2}(\lambda_s+\lambda_t)}{I_{(e)}(\lambda_s-\lambda_t)(\lambda_s\lambda_t)^{1/4}}
\end{aligned}
\right.
$$

où l'indice s caractérise une vibration non dégénérée et les indices t_1, t_2, les deux composantes d'une vibration dégénérée (les composantes t_1 et t_2 étant respectivement « orientées » suivant x et y).

Compte tenu de la forme du coefficient ${}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Z$ (équations 8), on peut déduire du résultat précédent que les seuls coefficients ${}_{(2)}U$ à considérer sont :

$$
{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}U^{t\sigma}\ (\sigma = 1 \text{ ou } 2), \qquad {}^{\alpha\beta}_{(2)}U_{ss} \quad \text{et} \quad {}^{\alpha\beta}_{(2)}U_{ss'}.
$$

D'une façon plus précise on montre que les seuls coefficients ${}_{(2)}Y$ et ${}_{(2)}U$ susceptibles d'intervenir dans le calcul sont les suivants :

$$
\begin{aligned}
{}^{xx}_{(2)}U_{ss} = {}^{yy}_{(2)}U_{ss} = &\frac{\hbar}{4I^2_{(e)}\lambda_s^{1/2}}\left[6 - \sum_t(\zeta^x_{st_2})^2\frac{5\lambda_s-7\lambda_t}{\lambda_s-\lambda_t}\right] \\
&+\frac{\pi c\,\hbar^{1/2}}{2I^2_{(e)}}\left[\frac{2k_{sss}\,a_s^{xx}}{\lambda_s^{3/4}} + \sum_{\substack{s' \\ s'\neq s}}k_{sss'}\,a^{xx}_{s'}\frac{3\lambda_s-\lambda_{s'}}{\lambda_{s'}^{3/4}(4\lambda_s-\lambda_{s'})}\right] \\
\underset{s\neq s'}{{}^{xx}_{(2)}U_{ss'}} = \underset{s\neq s'}{{}^{yy}_{(2)}U_{ss'}} = &-\frac{\hbar}{4I^2_{(e)}(\lambda_s\lambda_{s'})^{1/4}} \\
&\sum_t\zeta^x_{st_2}\zeta^x_{s't_2}\left(\frac{5\lambda_s-7\lambda_t}{\lambda_s-\lambda_t}+\frac{5\lambda_{s'}-7\lambda_t}{\lambda_{s'}-\lambda_t}\right) \\
&+\frac{\pi c\,\hbar^{1/2}}{2I^2_{(e)}}\Bigg[k_{sss'}\,a_s^{xx}\frac{5\lambda_s-\lambda_{s'}}{\lambda_s^{3/4}(4\lambda_s-\lambda_{s'})} \qquad (11) \\
&\qquad + k_{ss's'}\,a^{xx}_{s'}\frac{5\lambda_{s'}-\lambda_s}{\lambda_{s'}^{3/4}(4\lambda_{s'}-\lambda_s)} \\
&+\sum_{\substack{s'' \\ s''\neq s,s'}}k_{ss's''}\,a^{xx}_{s''}\frac{\lambda_{s''}(\lambda_{s''}-\lambda_s-\lambda_{s'})\,D_{ss's''}+1}{2\lambda_{s''}^{3/4}}\Bigg] \\
{}^{xxx}_{(2)}Y^{t_1} = &-{}^{yyy}_{(2)}Y^{t_2} = 2\,{}^{xyy}_{(2)}Y^{t_2} = 2\,{}^{yyx}_{(2)}Y^{t_1} = -2\,{}^{yxx}_{(2)}Y^{t_1} \\
= &-2\,{}^{xxy}_{(2)}Y^{t_1} = \frac{1}{4\hbar^{1/2}I^3_{(e)}}\sum_s\zeta^x_{t_2 s}\,a_s^{xx}\frac{\lambda_t^{1/4}(3\lambda_s-\lambda_t)}{\lambda_s(\lambda_s-\lambda_t)} \\
{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}U^{t\sigma} = &\frac{1}{2}\,{}^{\alpha\beta\gamma}_{(2)}Y^{t\sigma}.
\end{aligned}
$$

Pour établir les formules précédentes, nous avons utilisé les tables de la référence [6] et nous avons tenu compte de la valeur particulière des constantes d'interaction $a^{\alpha\beta}_{s\sigma}$, $A'^{\alpha\beta}_{s\sigma s'\sigma'}$, $\zeta^{\alpha}_{s\sigma s'\sigma'}$ pour une molécule linéaire, en remarquant [12] de plus que :

$$\sum_t \zeta^x_{t_2 s}\, \zeta^x_{t_2 s'} = \delta_{ss'} - \frac{1}{4 I_{(e)}}\, a^{xx}_s\, a^{xx}_{s'}. \tag{12}$$

b) Calcul de l'énergie. — L'opérateur $h^{\dagger}_{4RA}$ est diagonal par rapport à tous les nombres quantiques. La correction correspondante à l'énergie est donnée par la formule :

$$E_{4RA} = \sum_{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta} {}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}Z(J, l, .., |P_\alpha\, P_\beta\, P_\gamma\, P_\delta\, P_\varepsilon\, P_\eta|J, l, \ldots) \tag{13}$$

où, en désignant par l_s les nombres quantiques caractérisant le moment angulaire des diverses vibrations dégénérées,

$$l = \sum_s l_s = K \tag{14}$$

en vertu de la condition de Sayvetz (9)

En utilisant les valeurs données en appendice pour les éléments matriciels (2), on obtient, compte tenu des équations (8), (10) et (11) :

$$\begin{aligned} E_{4RA} = {} & \frac{\hbar^8}{2}(-W_1 + W_2 - W_3)\,[J(J+1) - l^2]^3 \\ & + \frac{\hbar^8}{4}(W_1 + 2W_3)\,[J(J+1) - l^2]^2 \\ & - \frac{\hbar^8}{2}(W_1 + 3W_3)\,[J(J+1) - l^2]\, l^2 \\ & - \frac{\hbar^8}{8} W_3 [J(J+1) - l^2] + \frac{\hbar^8}{2} W_3\, l^2 \end{aligned} \tag{15}$$

avec

$$\begin{aligned} W_1 &= \sum_{s,t} {}^{xx}S^{s}\; {}^{x}S_{st_2}\; {}^{xxx}_{(2)}U^{t_2} \\ W_2 &= \sum_{s,s'} {}^{xx}S^{s}\; {}^{xx}S^{s'}\; {}^{xx}_{(2)}U_{ss'}(1 + \delta_{ss'}) \\ W_3 &= \sum_t \frac{1}{\hbar\, \lambda_t^{1/2}} \left({}^{xxx}_{(2)}Y^t\right)^2 \end{aligned} \tag{16}$$

Seul le premier terme de E_{4RA}, de degré six en J, est effectivement du quatrième ordre ; nous négligerons les suivants (3) et écrirons :

$$E_{4RA} = hc\, H_e\, [J(J+1) - l^2]^3 \tag{17}$$

avec :

$$H_e = \frac{\hbar^7}{4\pi c}(-W_1 + W_2 - W_3). \tag{18}$$

(2) Les opérateurs $P_\alpha\, P_\beta\, P_\gamma\, P_\delta\, P_\varepsilon\, P_\eta$ de degré impair en P_y possèdent des éléments matriciels diagonaux imaginaires (donnés dans la deuxième partie de la table de l'appendice). Il leur correspond, comme on pouvait le prévoir, des coefficients ${}^{\alpha\beta\gamma\delta\varepsilon\eta}_{(4)}\Sigma$ nuls de telle sorte qu'ils ne contribuent pas à l'énergie.

(3) Remarquons que le second terme apparaît comme une correction d'ordre six à la constante de distorsion centrifuge D_e et le quatrième comme une correction d'ordre huit à la constante d'inertie B_e. Le principe adopté pour le groupement des termes dans les hamiltoniens H_0, H_1, H_2 . . . revient, en effet, à admettre que : $1/J$ est du même ordre de grandeur que H_{n+1}/H_n.

c) Calcul de la constante H_e. — Les équations (16), (11) et (10) donnent :

$$W_1 + W_3 = \frac{1}{8\hbar^2 I^6_{(e)}} \sum_{tss'} \zeta^x_{t_2 s}\, \zeta^x_{t_2 s'}\, a^{xx}_s\, a^{xx}_{s'}\, \frac{3\lambda_s - \lambda_t}{\lambda_s\, \lambda_{s'}(\lambda_s - \lambda_t)}$$

$$\begin{aligned} W_2 = {} & \frac{1}{8\hbar^2 I^6_{(e)}} \sum_{ss'} \frac{a^{xx}_s\, a^{xx}_{s'}}{\lambda_s\, \lambda_{s'}} \left[6\delta_{ss'} - \sum_t \zeta^x_{t_2 s}\, \zeta^x_{t_2 s'}\, \frac{5\lambda_s - 7\lambda_t}{\lambda_s - \lambda_t}\right] \\ & + \frac{\pi c}{8h^{5/2} I^6_{(e)}} \sum_{ss'} \frac{a^{xx}_s\, a^{xx}_{s'}}{(\lambda_s\, \lambda_{s'})^{3/4}} \Bigg[\left(1 + \frac{\delta_{ss'}}{2}\right) 2k_{sss'}\, a^{xx}_s\, \frac{5\lambda_s - \lambda_{s'}}{\lambda_s^{3/4}(4\lambda_s - \lambda_{s'})} \\ & + (1 + \delta_{ss'}) \sum_{\substack{s \\ s'' \neq s, s'}} k_{ss's''}\, a^{xx}_{s''}\, \frac{\lambda_{s''}(\lambda_{s''} - \lambda_s - \lambda_{s'})\, D_{ss's''} + 1}{2\lambda_{s''}^{3/4}}\Bigg]. \end{aligned}$$

En posant :

$$B_e = \frac{h}{8\pi^2 I_{(e)}\, c}, \qquad \omega_s = \frac{\lambda_s^{1/2}}{2\pi c},$$

en tenant compte de la relation (12) et en simplifiant l'écriture des deux derniers termes de W_2, on obtient la formule :

$$\begin{aligned} H_e = 4B_e^5 \Bigg\{ & \left[\sum_s \frac{(a^{xx}_s)^2}{I_{(e)}\, \omega_s^2}\right]^2 - \sum_s \frac{(a^{xx}_s)^2}{I_{(e)}\, \omega_s^4} \\ & + \sum_{\substack{s\, s'\, s'' \\ s \leqslant s' \leqslant s''}} \frac{a^{xx}_s\, a^{xx}_{s'}\, a^{xx}_{s''}\, k_{ss's''}}{I^{3/2}_{(e)}(\omega_s\, \omega_{s'}\, \omega_{s''})^{3/2}(2B_e)^{1/2}} \Bigg\}. \end{aligned} \tag{19}$$

Application à quelques modèles simples. — 1) Molécule diatomique. — (Une seule vibration normale, non dégénérée ; on peut omettre l'indice s)

$$H_e = \frac{32 B_e^5}{\omega^4}\left[\frac{3}{2} + \frac{k}{(2B_e\, \omega)^{1/2}}\right] \tag{20}$$

on peut vérifier que cette formule est équivalente (4) à celle précédemment obtenue par Dunham [8] et d'autres auteurs [9], [10].

2) Molécule triatomique XY_2 symétrique. — (Deux vibrations non dégénérées : $s = 1$ (Σ^+_g), $s = 3$ (Σ^+_u) ; une vibration dégénérée.)

$$H_e = \frac{32 B_e^5}{\omega_1^4}\left[\frac{3}{2} + \frac{k_{111}}{(2B_e\, \omega_1)^{1/2}}\right]. \tag{21}$$

3) Molécule triatomique XYZ. — (Deux vibrations non dégénérées $s = 1$, $3(\Sigma^+)$; une vibration dégénérée.)

$$\begin{aligned} H_e = 4B_e^5 \Bigg\{ & \left(\frac{(a^{xx}_1)^2}{I_{(e)}\, \omega_1^2} + \frac{(a^{xx}_3)^2}{I_{(e)}\, \omega_3^2}\right)^2 - \left(\frac{(a^{xx}_1)^2}{I_{(e)}\, \omega_1^4} + \frac{(a^{xx}_3)^2}{I_{(e)}\, \omega_3^4}\right) \\ & + \frac{1}{I^{3/2}_{(e)}(2B_e)^{1/2}} \Bigg[\frac{(a^{xx}_1)^3\, k_{111}}{\omega_1^{9/2}} + \frac{(a^{xx}_3)^3\, k_{333}}{\omega_3^{9/2}} \\ & + \frac{(a^{xx}_1)^2\, a^{xx}_3\, k_{113}}{\omega_1^{3}\, \omega_3^{3/2}} + \frac{a^{xx}_1 (a^{xx}_3)^2\, k_{133}}{\omega_1^{3/2}\, \omega_3^{3}} \Bigg]. \end{aligned} \tag{22}$$

(4) Rappelons que nos notations correspondent à un potentiel écrit sous la forme :

$$V = hc\left(\frac{1}{2}\omega q^2 + kq^3 + \ldots\right)$$

avec ω et k exprimés en cm^{-1} et q sans dimension.

4) MOLÉCULE TÉTRATOMIQUE X_2Y_2 SYMÉTRIQUE. — Trois vibrations non dégénérées $s = 1, 2$ (Σ_g^+), $s = 3$ (Σ_u^+) ; deux vibrations dégénérées.)

H_e est donné par une formule analogue à (22) dans laquelle il faut remplacer l'indice $s = 3$ par $s = 2$.

Remarque. — Dans les molécules linéaires symétriques, les coefficients a_s^{xx} correspondant à des vibrations Σ_u^+ sont nuls. Par ailleurs on a $a_s^{xx} = 2I_{(e)}^{1/2}$ pour la vibration Σ_g^+ d'une molécule diatomique ou d'une molécule XY_2.

Conclusion. — Le coefficient H_e étant inversement proportionnel à la cinquième puissance du moment d'inertie $I_{(e)}$, on peut prévoir que l'effet calculé dans le présent article sera en moyenne d'autant plus important que le nombre d'atomes sera plus petit, que ces atomes seront plus légers et que le molécule sera plus compacte. En ce qui concerne les molécules triatomiques l'effet considéré sera beaucoup plus important dans le cas des molécules non linéaires que dans celui des molécules linéaires (ceci pour deux raisons : *a*) pour des valeurs comparables des distances internucléaires et des masses, les moments d'inertie intervenant dans le calcul sont plus petits pour un modele non linéaire que pour un modele linéaire ; *b*) les molécules XH_2 qui sont les plus légeres ne sont pratiquement jamais linéaires).

Les considérations précédentes sont confirmées par le fait que, si l'on excepte les molécules diatomiques, la variation de E_R avec la sixième puissance des nombres quantiques rotationnels semble n'avoir été observée jusqu'ici que dans le cas de la molécule H_2O [11].

Nous tenons à exprimer au Pr H. H. Nielsen notre vive gratitude pour de très fructueux échanges de vues sur le problème des interactions d'ordre élevé.

Manuscrit reçu le 28 mars 1958.

Appendice. — Table des éléments matriciels diagonaux des opérateurs $P_\alpha P_\beta P_\gamma P_\delta P_\varepsilon P_\eta$

$(\alpha, \beta, \ldots \equiv x \text{ ou } y)$.

N. B. — Tous les opérateurs considérés sont diagonaux par rapport aux nombres quantiques J et M.

$$(K|P_x^6|K) = (K|P_y^6|K) = \frac{\hbar^6}{16}[5(f-K^2)^3 - 10(f-K^2)^2 + 25K^2(f-K^2) + 8(f-K^2) - 20K^2]$$

$$(K|P_y^4 P_x^2|K) = (K|P_x^4 P_y^2|K) = (K|P_y^2 P_x^4|K) = (K|P_x^2 P_y^4|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 + 6(f-K^2)^2 - 19K^2(f-K^2) - 8(f-K^2) + 20K^2]$$

$$(K|P_x P_y^4 P_x|K) = (K|P_y P_x^4 P_y|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 6(f-K^2)^2 + 29K^2(f-K^2) + 8(f-K^2) - 24K^2]$$

$$(K|P_x^3 P_y^2 P_x|K) = (K|P_y^3 P_x^2 P_y|K) = (K|P_x P_y^2 P_x^3|K) = (K|P_y P_x^2 P_y^3|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 + 5K^2(f-K^2) - 4(f-K^2) + 6K^2]$$

$$(K|P_x^2 P_y^2 P_x^2|K) = (K|P_y^3 P_x^2 P_y^2|K) = \frac{\hbar^3}{16}[(f-K^2)^3 - 2(f-K^2)^2 + 13(f-K^2) + 8(f-K^2) - 20K^2]$$

$$(K|P_x^3 P_y P_x P_y|K) = (K|P_y^3 P_x P_y P_x|K) = (K|P_x P_y P_x P_y^3|K) = (K|P_y P_x P_y P_x^3|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 7K^2(f-K^2) - 4(f-K^2) + 10K^2]$$

$$(K|P_x P_y^3 P_x P_y|K) = (K|P_y P_x^3 P_y P_x|K) = (K|P_x P_y P_x^3 P_y|K) = (K|P_y P_x P_y^3 P_x|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 6(f-K^2)^2 + 17K^2(f-K^2) + 8(f-K^2) - 20K^2]$$

$$(K|P_x^2 P_y P_x^2 P_y|K) = (K|P_y^2 P_x P_y^2 P_x|K) = (K|P_x P_y^2 P_x P_y^2|K) = (K|P_y P_x^2 P_y P_x^2|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 4(f-K^2)^2 + 5K^2(f-K^2) + 4(f-K^2) - 6K^2]$$

$$(K|P_x^2 P_y P_x P_y P_x|K) = (K|P_y^2 P_x P_y P_x P_y|K) = (K|P_x P_y P_x P_y P_x^2|K) = (K|P_y P_x P_y P_x P_y^2|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 4(f-K^2)^2 + 9K^2(f-K^2) + 4(f-K^2) - 10K^2]$$

$$(K|P_x P_y P_x^2 P_y P_x|K) = (K|P_y P_x P_y^2 P_x P_y|K) = \frac{\hbar^6}{16}[(f-K^2)^3 - 6(f-K^2)^2 + 13K^2(f-K^2) + 8(f-K^2) - 16K^2]$$

$$(K|P_y^5 P_x|K) = -(K|P_x P_y^5|K) = (K|P_y P_x^5|K) = -(K|P_x^5 P_y|K) = \frac{iK\hbar^6}{16}[15(f-K^2)^2 - 30(f-K^2) + 15K^2 + 8]$$

$$(K|P_x^3 P_y^3|K) = -(K|P_y^3 P_x^3|K) = -\frac{iK\hbar^6}{16}[9(f-K^2)^2 + 6(f-K^2) - 3K^2 - 4]$$

$$(K|P_y^4 P_x P_y|K) = -(K|P_x^4 P_y P_x|K) = (K|P_x P_y P_x^4|K) = -(K|P_y P_x P_y^4|K) = \frac{iK\hbar^6}{16}[9(f-K^2)^2 - 26(f-K^2) + 9K^2 + 8]$$

$$(K|P_x^3 P_y P_x^2|K) = -(K|P_y^3 P_x P_y^2|K) = (K|P_y^2 P_x P_y^3|K) = -(K|P_x^2 P_y P_x^3|K) = -\frac{iK\hbar^6}{16}[3(f-K^2)^2 - 10(f-K^2) + 3K^2 + 4]$$

$$(K|P_x^2 P_y^3 P_x|K) = -(K|P_y^2 P_x^3 P_y|K) = (K|P_y P_x^3 P_y^2|K) = -(K|P_x P_y^3 P_x^2|K) = -\frac{iK\hbar^6}{16}[3(f-K^2)^2 - 26(f-K^2) + 15K^2 - 8]$$

$$(K|P_x^2\, P_y^2\, P_x\, P_y|K) = (K|P_y^2\, P_x^2\, P_y\, P_x|K)$$
$$= -(K|P_x\, P_y\, P_x^2\, P_y^2|K) = -(K|P_y\, P_x\, P_y^2\, P_x^2|K)$$
$$= -\frac{iK\hbar^6}{16}\,[5(f-K^2)^2 - 22(f-K^2) + 9K^2 + 8]$$

$$(K|P_x^2\, P_y\, P_x\, P_y^2|K) = -(K|P_y^2\, P_x\, P_y\, P_x^2|K)$$
$$= -\frac{iK\hbar^6}{16}\,[7(f-K^2)^2 - 14(f-K^2) + 3K^2 + 4]$$

$$(K|P_x\, P_y^2\, P_x^2\, P_y|K) = -(K|P_y\, P_x^2\, P_y^2\, P_x|K)$$
$$= -\frac{iK\hbar^6}{16}\,[(f-K^2)^2 + 6(f-K^2) + 5K^2 - 4]$$

$$(K|P_x\, P_y^2\, P_x\, P_y\, P_x|K) = -(K|P_y\, P_x^2\, P_y\, P_x\, P_y|K)$$
$$= (K|P_y\, P_x\, P_y\, P_x^2\, P_y|K) = -(K|P_x\, P_y\, P_x\, P_y^2\, P_x|K)$$
$$= \frac{iK\hbar^6}{16}\,[(f-K^2)^2 - 10(f-K^2) + 5K^2 + 4]$$

$$(K|P_x\, P_y\, P_x\, P_y\, P_x\, P_y|K) = -(K|P_y\, P_x\, P_y\, P_x\, P_y\, P_x|K)$$
$$= -\frac{iK\hbar^6}{16}\,[3(f-K^2)^2 - 14(f-K^2) + 7K^2 + 4]$$

Manuscrit reçu le 28 mars 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] NIELSEN (H. H.), *Rev. Mod. Physics*, 1951, **23**, 90.
[2] GOLDSMITH (M.), AMAT (G.) et NIELSEN (H. H.), *J. Chem. Phys.*, 1956, **24**, 1178.
[3] AMAT (G.), GOLDSMITH (M.) et NIELSEN (H. H.), *J. Chem. Phys.*, 1957, **27**, 839.
[4] AMAT (G.) et NIELSEN (H. H.), *J. Chem. Phys.*, 1957, **27**, 845.
[5] AMAT (G.) et NIELSEN (H. H.), *J. Chem. Phys.*, 1958, **29**, 665.
[6] GRENIER-BESSON (M. L.), AMAT (G.) et MAES (S.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 781.
[7] SAYVETZ (A.), *J. Chem. Phys.*, 1939, **7**, 383.
[8] DUNHAM (J. L.), *Phys. Rev.*, 1932, **41**, 721.
[9] SANDEMAN (I.), *Proc. Roy. Soc.*, Edinburgh, 1940, **60**, 210.
[10] HERZBERG (G.), Infra-Red and Raman Spectra Van Nostrand, New York, 1951, p. 377.
[11] BENEDICT (W. S.), *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1317.
[12] AMAT (G.) et HENRY (L.), *Cahiers de Physique*, 1958, **95**, 273.

REVUE DES LIVRES

BRUHAT (G.), **Cours de Physique générale. Électricité.** (6e édition entièrement remaniée par G. GOUDET. 1 vol., 16,5 × 25 cm, 900 p., 517 fig. Masson et Cie, Paris, 1956, 5 100 F).

Ce livre qui est une partie essentielle du *Cours de Physique générale* (4 volumes) de G. Bruhat est demeuré un livre de base, indispensable aux étudiants et très utile, entre autres, à beaucoup d'ingénieurs. Il devenait, toutefois, nécessaire, la dernière édition datant de 1947, de le remettre à jour. Ce travail a été confié à M. Goudet, qui ne s'est pas contenté de le compléter mais l'a profondément remanié et modernisé.

La première partie reste consacrée à l'électrostatique (charges au repos). Mais c'est l'électrocinétique (charges en mouvement continu) qu'on étudie ensuite au lieu du magnétisme (dans les éditions précédentes). L'étude du magnétisme est rattachée à l'électrocinétique : il est présenté, d'abord, comme une propriété de charges en mouvement ; ensuite seulement comme une propriété de certains matériaux. Puis on considère les propriétés des charges animées de mouvements périodiques de :

— Fréquence Industrielle : états quasi stationnaires, lois simplifiées.

— Haute Fréquence : lois générales, propagation d'ondes électromagnétiques, identité avec les ondes lumineuses.

Bien que le livre, presque tout entier, ait été réécrit, c'est surtout la dernière partie qui a été modifiée : M. Goudet a élagué et complété. C'est ainsi que le chapitre sur la Radioactivité a été supprimé et remplacé par l'étude des propriétés des Solides. Les théories modernes (Mécanique quantique) ont fait l'objet d'exposés plus détaillés.

Signalons, à titre d'exemples, quelques-unes des modifications apportées au long de l'ouvrage qui sont :

— des compléments d'ordre mathématique (Méthodes d'intégration de l'Équation de Laplace) ;

— des descriptions d'appareils nouveaux (Machines de Felici, Transistor) ;

— des applications pratiques de formules (Effet de Peau).

De plus, ceci est essentiel, toutes les formules sont écrites dans le système Giorgi rationalisé (au bas de chaque page, on donne en note, les formules correspondantes non rationalisées). Le chapitre sur les unités a été revu en conséquence.

Le fonctionnement des appareils de mesure, des machines industrielles tient toujours autant de place, ce qui conserve au livre un côté pratique.

L'ouvrage est bien présenté, la typographie est bonne mais beaucoup de petites erreurs matérielles ralentissent, par moment, la lecture. Les photographies d'appareils vétustes contrastent avec le rajeunissement qu'ont subi la forme et le fond du livre.

E. DIEULESAINT.

Conférence annuelle internationale sur la physique des hautes énergies tenue au C. E. R. N., en 1958. 1 vol. relié de 358 p., 22 × 37 cm, édité par le C. E. R. N., Genève, 1958. Prix 45 fr. s. (Service d'Information Scientifique du C. E. R. N., Genève, 23).

Tous les rapports théoriques et expérimentaux, ainsi que les discussions sont en langue anglaise. Cet ouvrage s'adresse aux physiciens bien spécialisés dans l'étude des hautes énergies et dans la théorie des particules élémentaires. Les noms des conférenciers suffiront à nous dispenser de toute appréciation critique. Sessions : 1. Structure du nucléon (Panofsky, Drell). 2. Le nucléon et son interaction avec les pions, photons, nucléons et antinucléons (Puppi, Piccioni). 3. Même sujet (Chew). 4. Idées théoriques fondamentales (Yukawa, Heisenberg, Pauli, etc...). 5. Production des particules étranges (Steinberger, Feld, Gell-Mann, D'Espagnat). 6. Interaction des particules étranges (Kaplon, Tripp, Dalitz). 7. Sujets théoriques particuliers (Goldberger, A. Bohr, Feynman). 8. Interactions faibles. Modes par leptons (Goldhaber, Michel, Gell-Mann, etc...). 9. Interactions faibles. Autres modes (Glaser, Good, Morrison, Treiman, etc...). 10. Conclusion (Oppenheimer). Enfin des appendices théoriques et expérimentaux.

J. W. WINTER.

DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DE L'AMPLITUDE DES VIBRATIONS DE TRÈS HAUTE FRÉQUENCE D'UN QUARTZ PLONGÉ DANS UN LIQUIDE

Par S. PARTHASARATHY et HARKRISHAN SINGH,
National Physical Laboratory of India, New Delhi.

Résumé. — Emploi de la méthode thermo-acoustique pour déterminer l'amplitude des vibrations de très haute fréquence d'un quartz plongé dans un liquide. Cette amplitude varie en raison inverse de l'impédance acoustique du liquide. Les résultats expérimentaux confirment les prévisions théoriques.

Abstract. — The thermosonic method has been used for determining the amplitude of quartz vibrating in liquids at very high frequencies. It is found that the amplitude varies inversely as the acoustic impedance of the liquid. Very good agreement is observed between the experimental and the theoretical values of the amplitude.

1. **Introduction.** — On a établi, au cours de ces dernières années, plusieurs méthodes de mesure des amplitudes des vibrations de basse fréquence de sources telles que les diaphragmes [1, 2].

On peut employer un stroboscope électronique, et mesurer par visée directe au microscope les déplacements entre les positions extrêmes, compris entre 0,2 et $6 . 10^{-4}$ cm. On peut aussi utiliser, pour les moyennes et hautes fréquences les franges d'interférence des lames minces [3, 4, 5, 6, 7], en se servant d'interféromètres de Michelson ou de Fizeau, ce qui permet de mesurer des déplacements descendant jusqu'à 10^{-6} cm.

La méthode des franges d'interférence a été perfectionnée par Borovitskaia [8] et appliquée avec succès à la mesure des amplitudes d'oscillations mécaniques dans différentes sortes de caoutchoucs à des fréquences de quelques kilohertz. Avec ce dispositif, les franges d'un interféromètre de Michelson sont projetées sur la cathode d'un photomultiplicateur, la tension du photomultiplicateur, est appliquée à l'entrée d'un filtre à bande étroite, dont la sortie est reliée à l'instrument de mesure. Si l'un des miroirs de l'interféromètre vibre à la fréquence ω, la différence de marche entre les faisceaux qui interfèrent varie avec la même fréquence. On peut ainsi déceler des déplacements de l'ordre de 0,01 Å avec des fréquences atteignant 10 kHz.

Dans le présent article, la méthode thermoacoustique [9] est discutée et appliquée à la mesure de l'amplitude de quartz vibrant à très haute fréquence.

2. **Théorie.** — L'émetteur à lame de quartz, grâce à ses propriétés piézoélectriques, produit des vibrations longitudinales dans la direction de l'épaisseur de la plaque. Admettant que toute la face vibre avec la même amplitude et la même phase et se comporte comme un piston animé d'une oscillation de va et vient de haute fréquence, la puissance moyenne rayonnée par une telle source d'ondes planes, de surface S est [10]

$$P = 2\pi^2 \rho c a^2 N^2 S \tag{1}$$

où ρc est la résistance de radiation du milieu qui transmet les ondes acoustiques et N la fréquence. Si l'on connaît la puissance rayonnée par l'émetteur, on peut calculer l'amplitude.

La puissance P peut être mesurée par la méthode thermique mise au point par Parthasarathy et ses collaborateurs [11]. La méthode utilise la relation $I = JH$, où I est l'intensité acoustique, H la chaleur dégagée par les ondes et J l'équivalent mécanique de la calorie.

La quantité totale de chaleur produite est mesurée par une méthode calorimétrique. Elle se divise en deux parties, l'une provenant de l'absorption du son dans le milieu qui le transmet, l'autre de l'échauffement diélectrique du cristal de quartz. La première, due à l'énergie ultrasonore, s'obtient donc en retranchant la chaleur d'échauffement diélectrique du quartz de la chaleur totale produite. La quantité de chaleur à retrancher s'obtient en remplaçant le quartz par une lame de verre de mêmes dimensions et de même constante diélectrique [12].

3. **Résultats et discussion.** — Les valeurs du dégagement de chaleur donnent les résultats obtenus dans ce laboratoire en liaison avec un autre aspect du problème de thermoacoustique [13]. La puissance de l'émission ultrasonore dans différents liquides, déterminée précédemment [14] est donnée dans le tableau I. L'amplitude de vibration d'un cristal de quartz taillé suivant X et de surface 5,76 cm², vibrant à sa fréquence fondamentale de 4,916 MHz sous une tension de 1 V, calculée

d'après les mesures d'émission sonore, est donnée dans la colonne 7, et la résistance de radiation ρc du milieu dans la colonne 4 du même tableau.

L'examen des résultats montre que pour la même alimentation, l'amplitude de la lame de quartz varie suivant le liquide qui la baigne. Cette amplitude décroît quand la résistance de radiation augmente, et la décroissance est graduelle et uniforme.

TABLE I

Liquide	C m/s	(gρ/cm³)	$\rho c \times 10^{-3}$	Voltage	Débit ultrasonore en watts	$a \times 10^9$ Experimental (cm) par volt	$a \times 10^9$ Théorique (cm) par volt
—	—	—	—	—	—	—	—
1. Hexane	1 083	0,654	71	170	1,830	1,81	2,74
2. Alcool méthylique	1 123	0,792	89	160	2,393	1,96	2,18
3. Alcool éthylique	1 180	0,789	93	158	1,652	1,61	2,08
4. Acétone	1 191	0,792	94	158	1,626	1,59	2,06
5. Méthyl-éthyl-cétone	1 207	0,805	97	94	0,579	1,56	1,99
6. Alcool propylique (n)	1 223	0,804	98	165	1,796	1,56	1,97
7. Butyrate d'éthyle	1 171	0,877	103	172	1,681	1,42	1,88
8. Alcool butylique (n)	1 268	0,810	103	165	1,514	1,40	1,88
9. Toluène	1 328	0,866	115	171	1,210	1,15	1,69
10. Xylène (m)	1 320	0,863	116	158	1,364	1,31	1,67
11. Benzène	1 326	0,878	116	155	1,199	1,25	1,67
12. Huile d'olive	1 381	0,840	125	170	1,106	1,06	1,55
13. Cyclohexanone	1 449	0,949	138	163	1,386	1,17	1,41
14. Chlorobenzène	1 291	1,107	143	162	1,308	1,13	1,36
15. Sulfure de carbone	1 158	1,263	146	168	1,089	0,98	1,33
16. Chloroforme	1 005	1,489	149	94	0,511	1,18	1,30
17. Tétrachlorure de carbone	938	1,595	150	173	1,361	1,05	1,29
18. Éthylène alcool	1 616	1,115	180	171	0,840	0,76	1,08
19. Glycérine	1 923	1,261	252	173	1,026	0,72	0,80

L'amplitude du quartz vibrant en résonance peut aussi se calculer par la relation [15]

$$a = \frac{2C_{11}\ Vd}{\pi\, C_1\, \rho\, C} \tag{2}$$

où C_{11} est le module élastique déterminant la vibration de la plaque suivant l'épaisseur, d la variation d'épaisseur de la plaque, C_1 la célérité du son dans le quartz et ρc la résistance de radiation du milieu de propagation.

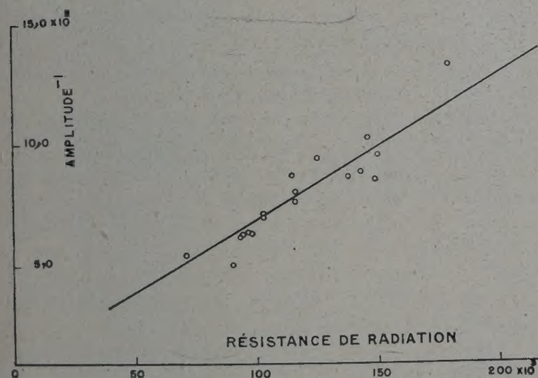


Fig. 1.

Cette relation prévoit une variation de l'amplitude en raison inverse de la résistance de radiation. Pour le vérifier, on a porté (*fig.* 1) ρc en fonction de l'inverse de l'amplitude : on obtient bien la droite prévue.

Les valeurs de l'amplitude pour différents liquides calculées d'après la relation (2) sont données dans la colonne 8. Les ordres de grandeur des valeurs expérimentales et théoriques de l'amplitude concordent assez bien. Toutefois, les valeurs théoriques sont régulièrement supérieures aux valeurs expérimentales correspondantes. La faible différence constatée peut être due à plusieurs causes.

En effet, la formule servant au calcul des valeurs théoriques n'est exacte que dans des conditions idéales. Elle suppose que les amortissements dans le cristal et par le support sont nuls, ce qui n'est jamais le cas. Elle suppose également que la déformation est plane, c'est-à-dire que les surfaces planes de la plaque se meuvent comme un piston, avec le même déplacement a pour tout point de la surface. Or, les recherches de Dye [16] ont montré que pour des lames minces taillées suivant X, le déplacement varie sur la surface, certains points restant même immobiles. Les deux relations utilisées pour les calculs ne correspondent donc pas rigoureusement aux conditions des expériences.

En tenant compte de ces approximations, nous pouvons considérer que l'accord entre les valeurs théoriques et expérimentales de l'amplitude de vibration d'une plaque de quartz est satisfaisant. Cet accord suggère que la méthode thermoacoustique donne des résultats exacts pour les amplitudes de vibration, et qu'elle s'applique dans un grand intervalle de fréquences.

Manuscrit reçu le 2 mai 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Edelman, Jones et Smith, *J. Acoust. Soc. Amer.*, 1955, **27**, 728.
[2] Edelman, Jones et Smith, *J. Acoust. Soc. Amer.*, 1956, **28**, 780.
[3] Thomas et Warren, *Phil. Mag.*, 1928, **5**, 1125.
[4] Smith (D. H.), *Proc. Phys. Soc.*, London, 1945, **57**, 534.
[5] Shaw (E. A. G.), *J. Acoust. Soc. Amer.*, 1956, **28**, 38.
[6] Ziegler (C. A.), *J. Acoust. Soc. Amer.*, 1953, **25**, 135.
[7] Dairs (S. M.), *Nature*, 1956, **178**, 161.
[8] Borovitskaia (N. M.), « *Doklady* » *Soviet Physics*, 1956, **1**, 493. English translation by A. I. P.
[9] Parthasarathy (S.) et Harkrishan Singh, *Nature*, 1958, **181**, 260.
[10] Parthasarathy (S.), Srinivasan (D.) et Chari (S. S.), *Nature*, 1950, **166**, 829.
[11] Par ex., Wood (A.), Text book of sound, Bell and Sons, 1955, 55.
[12] Parthasarathy (S.), Chari (S. S.), et Srinivasan (D.), *Ann. Physik*, 1953, **11**, 8.
[13] Parthasarathy (S.), Chari (S. S.) et Srinivasan (D.), *Z. Physik*, 1953, **135**, 395.
[14] Par ex., Vigoureux (P.), Ultrasonics, Chapman and Hall, Londres, 1950, 9.
[15] Parthasarathy (S.) et Narasimhan (V.), *Z. Physik*, 1955, **143**, 300.
[16] Dye (W. D.), *Proc. Roy. Soc.*, London, A 1932, **138**, 1.

REVUE DES LIVRES

Colloque national sur l'optique moléculaire et la physicochimie structurale (1 vol., 16 × 24 cm, 95 pages, Éditions de la Revue d'Optique théorique et instrumentale, Paris, 1956, 500 F).

En mai 1956 a été organisé à Bordeaux, par la Société française de Physique et la Faculté des Sciences de Bordeaux, un Colloque national sur l'optique moléculaire et la physicochimie structurale. M. Rousset, Professeur à la Faculté des Sciences de Bordeaux était le secrétaire général du Colloque.

39 communications, abordant des sujets très variés, ont été présentées et sont publiées ici.

La plupart décrivent des études expérimentales. Cependant quelques communications (8) sont purement d'ordre théorique (modèle métallique, modèle des orbitales moléculaires, diffusion de la lumière, magnétochimie...).

De nombreuses communications (une douzaine) sont consacrées aux études d'absorption infra-rouge et ultraviolettes.

L'optique moléculaire, sous l'active impulsion de M. Rousset et la physicochimie structurale sous celle de M. Pacault sont très vivantes à Bordeaux. De nombreuses communications illustrent ce domaine : diffusion de la lumière (effet Rayleigh, effet Raman) luminescence moléculaire ... d'une part, magnétisme, rayons X, orientation moléculaire de l'autre.

Enfin un certain nombre de communications diverses ont été présentées dans le cadre d'une séance de la Société française de Physique (Section du Sud-Ouest).

Les éditions de la Revue d'Optique théorique et instrumentale ont apporté leur soin habituel à l'édition des comptes rendus de ce Colloque. Impression claire, papier de belle qualité.

J. Badoz.

Fisher (J. C.), Johnston (W. G.), Thomson (R.) et Vreeland, Jr. (T.), **Dislocations et propriétés mécaniques des cristaux.** (Dislocations and mechanical properties of crystals.) 1 vol., 16 × 24 cm, 648 pages relié (nombreuses illustrations). John Wiley and Sons, New-York, 1957. Dollars : 15 (en anglais).

Une conférence restreinte réunissait en septembre 1956 à Lake Placid les spécialistes de la théorie des dislocations et ceux qui pouvaient déjà en fournir des preuves expérimentales directes et indirectes — (déformation des monocristaux de grande pureté — écrouissage et revenu — impuretés dans les alliages et limite élastique — amortissement des dislocations et fatigue) ou s'attacher à des problèmes connexes, ceux des cristaux fins — semblables aux barbes des épis — ou ceux qui résultent d'une irradiation de forte énergie.

Un très vaste champ d'expérience est couvert par un tel volume où s'appliquent des techniques extrêment diverses avec des succès considérables. Parmi les plus spectaculaires, on assiste à l'inauguration de la cinématographie des mouvements des dislocations dans l'aluminium (Microscope électronique par transmission, P. B. Hirsch à Cambridge, Grande-Bretagne), tandis que les glissements dans le fluorure de lithium sont identifiés à l'action des deux types bien connus de dislocation (Attaques ménagées et microscope optique, J. J. Gilman et W. G. Johnston, Schenectady, U. S. A.) et que le mécanisme multiplicateur apparaît dans le silicium pur après diffusion de cuivre en conformité rigoureuse avec les schémas théoriques (Microscopie en infrarouge, W. C. Dash, Schenectady, U. S. A.).

La physique des solides ne peut plus se passer de la théorie des dislocations ; cet ouvrage marque l'étape décisive de l'apparition des preuves expérimentales saisies à des échelles très diverses, ouvrant ainsi la voie de recherches fructueuses et d'utilité incontestable.

A. R. Weill.

RÉTRODIFFUSION DU RAYONNEMENT β DANS LA MATIÈRE

Par André HETTLER,
Laboratoire de Chimie Nucléaire, Strasbourg.

Résumé. — Étude des divers facteurs influençant le taux de rétro-diffusion du rayonnement β : nombre atomique du support, masse superficielle et nombre atomique moyen de la source.

Abstract. — A survey of various factors influencing the back-scattering of β radiation : atomic number of support, thickness and average atomic number of source.

Le phénomène de rétrodiffusion du rayonnement β d'une substance radioactive par le support sur lequel cette substance est placée, a fait déjà l'objet de nombreuses études [1, 2, 3, 4, 5]. Mais les résultats indiqués par ces auteurs ne sont pas utilisables dans la pratique, car ces auteurs se sont placés dans des conditions idéales d'une source sans matière. Certains auteurs [2, 3, 6, 7, 8] ont tenu compte de la présence en quantité pondérable d'un sel quelconque, mais ils n'ont pas étudié systématiquement l'influence de l'épaisseur et du numéro atomique moyen de ce sel sur le phénomène de rétrodiffusion. Or, dans la pratique, les sources radioactives sont généralement constituées par une quantité pondérable d'un sel du même élément que le radioélément étudié, ou même d'un sel d'un autre élément, présent soit comme entraîneur, soit comme impureté.

Dans les mesures que nous avons faites en vue d'étudier le phénomène de rétrodiffusion, nous nous sommes placés intentionnellement dans des conditions de mesure aussi proches que possible de celles adoptées habituellement dans les mesures des sources radioactives (voir schéma ci-dessous). Ces conditions ne sont pas des conditions idéales permettant d'étudier le phénomène de rétrodiffusion par un support de numéro atomique variable, sans qu'interviennent des phénomènes secondaires, tels que la réflexion sur des parois autres que le support proprement dit. En outre, les sources avec lesquelles nous avons étudié la rétrodiffusion n'étaient pas des sources sans matière, mais au contraire, elles étaient constituées par des quantités variables de différents sels auxquels était mélangé intimement un radioélément, le ^{32}P « sans entraîneur », c'est-à-dire que la quantité maximum de phosphate de sodium était, dans nos expériences de l'ordre de 10^{-9} g.cm^{-2} et celle du chlorure de sodium de 10^{-7} g.cm^{-2} pour chaque source.

Ces conditions permettaient d'étudier l'influence du numéro atomique moyen du sel — défini plus loin — présent dans la source, ainsi que l'influence de l'épaisseur de la couche de ce sel, sur la rétrodiffusion.

Technique expérimentale :

COMPTEUR : Nous avons utilisé un compteur Geiger-Muller, du type compteur-cloche, dont la fenêtre avait une masse superficielle de 7 mg cm^{-2}, et qui était adapté sur une boîte en aluminium, (voir *fig.* 1).

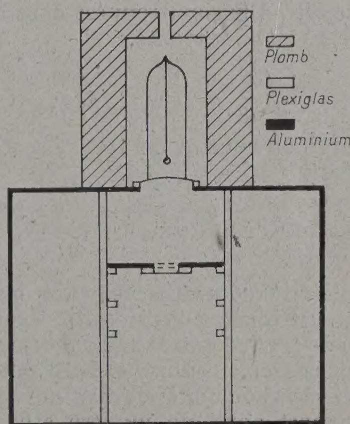


FIG. 1. — Schéma du montage. Échelle 1/30.

PORTEUR : Le porteur qui contenait la source radioactive était formé par un anneau en plexiglas, de 15 mm de diamètre intérieur, de 20 mm de diamètre extérieur et de 2 mm d'épaisseur. Le fond de cet anneau était constitué par un ruban adhésif ; nous avons essayé de remplacer ce dernier par un film de formwar, mais il était beaucoup plus facile d'avoir une source d'épaisseur uniforme en utilisant du ruban adhésif. Le porteur a été collé sous une lame en aluminium de 5 mm d'épaisseur, percée d'une ouverture de 20 mm de diamètre ; le fond du porteur, c'est-à-dire le ruban adhésif, était à 37 mm de la fenêtre du compteur.

SUPPORTS : Les supports ont été mis en contact avec le fond du porteur, la distance entre le fond et les supports ne dépassant pas 0,1 mm. On a utilisé comme supports de l'aluminium, du cuivre et

de l'or, d'épaisseur suffisante pour avoir une rétrodiffusion à saturation [1].

Matière : La même quantité de solution active a toujours été ajoutée à des quantités croissantes d'un sel donné. Le mélange a été évaporé à sec, réduit en poudre et mis dans le porteur pour la mesure. Nous avons pris des sels qui permettaient d'obtenir des sources d'épaisseur uniforme, et dont le numéro atomique moyen était compris dans un intervalle de 7 à 73.

Source : Nous avons utilisé, pour ces premières déterminations, le rayonnement du ^{32}P, d'énergie 1,7 MeV.

Erreurs : Toutes les mesures ont été effectuées sur 20 000 à 30 000 coups, soit à 1 % près. Le déplacement horizontal de la source pouvait introduire une fluctuation maximum de 2 à 3 %.

Résultats.

1) Source sans matière : La moyenne des valeurs de rétrodiffusion trouvées dans les articles (1, 2, 3, 4, 5) est la suivante :

Al	Cu	Au
29 %	49 %	80 %

Les valeurs que nous avons trouvées sont un peu plus faibles :

23 ± 3 % 43 ± 3 % 79 ± 3 %.

Remarques :

La faible différence observée entre les résultats peut être attribuée au dispositif expérimental. Nous avions trouvé que le taux de rétrodiffusion variait considérablement avec la distance source-compteur, variation qui était d'autant plus grande que le support avait un numéro atomique plus élevé. D'autre part, la fenêtre du compteur, jouant le rôle de filtre, intervient dans une très large mesure dans le phénomène de rétrodiffusion [9, 10].

2) Source avec matière : En partant d'une source sans matière de ^{32}P, et en augmentant progressivement la masse superficielle de cette source en ajoutant du phosphate monopotassique inactif, nous avons trouvé les valeurs représentées par les courbes de la figure 2.

Si l'on représente le carré du rayonnement rétrodiffusé [11], on trouve les droites représentées sur la figure 3. Pour des supports de numéro atomique supérieur à 10 environ, d'après nos expériences nous pouvons écrire :

$$I_Z = I_0 \sqrt{a(Z - 10)}$$

I_Z = activité d'une source support Z.
I_0 = activité de la source sans support.
a = fonction de la masse superficielle et du Z de la matière.

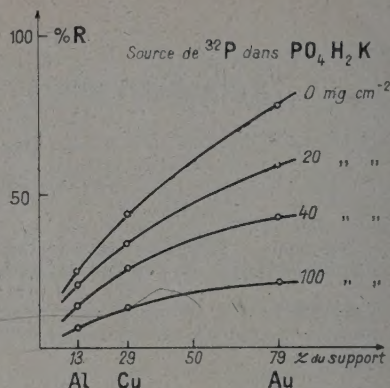


Fig. 2.
Taux de rétrodiffusion en fonction du Z du support et de la masse superficielle de la source.

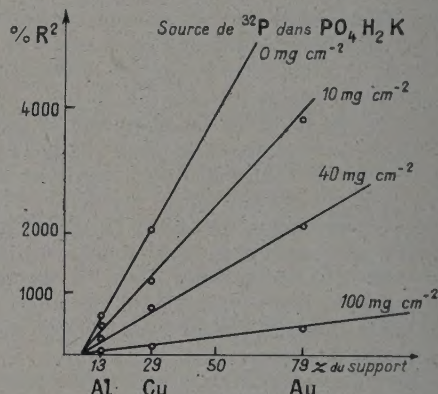


Fig. 3.
Carré du taux de rétrodiffusion en fonction du Z du support et de la masse superficielle de la source.

3) Variation du Z de la matière : Nous avons également étudié l'influence de la nature du sel sur la variation de la rétrodiffusion. Pour cela il fallait pouvoir attribuer au sel un Z fictif. Des travaux sur la rétrodiffusion du rayonnement β par les sels, soit à l'état solide [12, 13], soit en solution [11], ont montré que le Z fictif du sel pouvait être calculé par la formule de Muller :

$$Z_{AmBn} = \frac{mAZ_A + nBZ_B}{mA + nB}.$$

Nous avons fait des séries de mesures de sources ayant des masses superficielles de

5, 10, 20, 30, 40, 60, 100 mgcm^{-2}

avec les sels suivants :

$C_2O_4(NH_4)_2$	Z = 7,0
PO_4H_2K	12,6
MnO_2	18,8
BrO_3K	23,6
BaO	51,0
$Pb(NO_3)_2$	52,5
Pb_3O_4	73,5

Nous donnons ci-dessous le tableaux du taux en centièmes de la rétrodiffusion en fonction de la masse superficielle de la source, et de la nature des sels pour des rétrodiffusions de natures différentes.

Al	0	5	10	20	30	40	60	100 mgcm^{-2}
$C_2O_4(NH_4)_2$	23	20	20	16	—	15	7	6
PO_4H_2K	23	20	19	16	15	12	8	5
MnO_2	23	19	15	15	14	11	5	2
BrO_3K	23	17	17	13	11	10	6	2
BaO	23	18	14	12	9	11	7	2
$(NO_3)_2Pb$	23	17	16	13	10	8	6	3
Pb_3O_4	23	15	13	10	6	5	4	1
Cu								
$C_2O_4(NH_4)_2$	43	39	38	35	—	28	17	11
PO_4H_2K	43	36	34	33	31	26	18	11
MnO_2	43	37	31	27	24	21	14	8
BrO_3K	43	35	30	24	24	20	12	7
BaO	43	33	27	23	19	18	14	4
$(NO_3)_2Pb$	43	32	30	21	19	17	12	6
Pb_3O_4	43	30	25	20	13	9	9	2
Au								
$C_2O_4(NH_4)_2$	79	74	75	63	—	50	36	23
PO_4H_2K	79	68	62	61	54	46	38	22
MnO_2	79	62	56	51	46	38	28	15
BrO_3K	79	61	55	46	43	39	25	14
BaO	79	58	50	43	35	34	25	13
$(NO_3)_2Pb$	79	53	53	41	36	33	24	13
Pb_3O_4	79	54	47	38	28	25	18	7

Discussion. — Pour tirer des renseignements de nos résultats expérimentaux, il fallait déterminer les causes de la variation de la rétrodiffusion en fonction du Z du support, du Z et de la masse superficielle du sel de la source. Nous avons groupé les valeurs dans trois tableaux correspondant aux trois supports utilisés. Dans chaque tableau, nous avons pris le taux de rétrodiffusion dû au support seul, comme étant égal à 100 et nous avons rapporté toutes les valeurs à cette dernière. Pour un sel et une masse donnés, nous avons trouvé que les valeurs relatives correspondant aux trois supports étaient égales entre elles, avec une approximation de 3 %, ce qui était compatible avec les erreurs de nos mesures. La variation « relative » de la rétrodiffusion semble donc indépendante de la nature du support.

En supposant que cette variation soit due à une absorption du rayonnement rétrodiffusé, nous avons représenté le logarithme de la valeur moyenne de la rétrodiffusion relative, en fonction de la masse superficielle de la matière, pour les différents sels étudiés (*fig.* 4). Mis à part le début des courbes jusqu'à 5 mg cm^{-2}, nous pouvons conclure que l'absorption du rayonnement rétrodiffusé se fait suivant une loi exponentielle et que cette absorption dépend du numéro atomique moyen du sel, beaucoup plus que dans les cas de l'absorption proprement dite.

Remarque :

L'exemple de la baryte et du nitrate de plomb, de Z voisin, montre que la nature du sel n'intervient pas dans la variation de la rétrodiffusion ; cette dernière est donc uniquement fonction du numéro atomique moyen du sel.

Si l'on représente maintenant, en fonction du Z du sel, le coefficient angulaire des droites de la

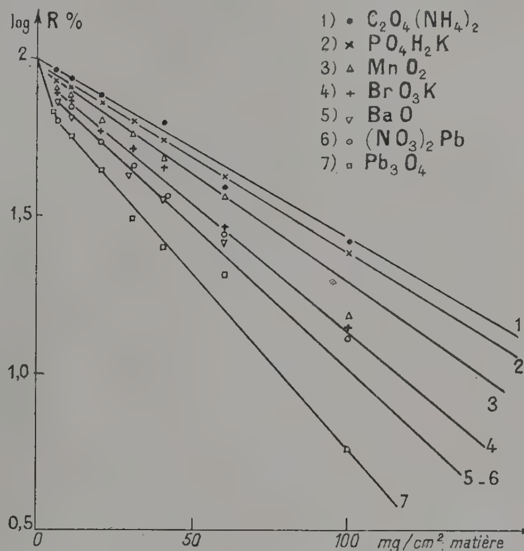


FIG. 4. — Absorption du rayonnement rétrodiffusé dans la matière de la source.

figure 4, exprimé par le coefficient d'absorption de moitié $A^{1/2}$ (gcm^{-2}) du rayonnement rétrodiffusé, on trouve la courbe de la figure 5.

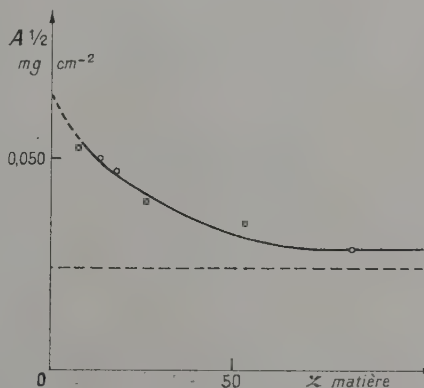


FIG. 5. — Coefficient d'absorption de moitié du rayonnement rétrodiffusé en fonction du Z de la matière.

A partir de ces deux dernières courbes, on peut calculer le pourcentage de rayons β rétrodiffusés, connaissant le Z et la masse superficielle de la matière de la source (supérieure à 5 mg cm^{-2}), et le Z du support.

Une étude plus détaillée, avec un montage plus perfectionné permettant de réduire la diffusion parasite due au dispositif expérimental, est en cours. Elle permettra de compléter le présent travail et de confirmer certains résultats sur le filtrage du rayonnement rétrodiffusé par les couches métalliques minces.

Je remercie Mlle M. Perey, Directeur du Laboratoire de Chimie Nucléaire, qui m'a permis de faire ce travail rendu nécessaire à la suite des observations faites au cours de l'établissement d'une nouvelle méthode de dosage de l'actinium [14]

Je tiens à remercier M. Danguy du Laboratoire de Recherches Nucléaires de Mons, de l'intérêt qu'il a porté à mon travail et des conseils judicieux qu'il m'a donnés.

Manuscrit reçu le 7 juillet 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Siri, Isotopic Tracers and Nuclear Radiations, p. 375.
[2] Coryell, Sugarmann, Manhattan Project, IV, 9, 1.
[3] Yaffe, Justus, *J. Chem. Soc.*, 1949, Suppl. N. 72, S, 341.
[4] Burtt, *Nucleonics*, 1949, **6**, 28.
[5] Seliger, *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 408.
[6] Yankwich, Weigl, *Science*, 1948, **107**, 651.
[7] Collie, Shaw, Gale, *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, A, 282.
[8] Nervik, Stevenson, *Nucleonics*, 1952, **10**, 3, 18.
[9] Bothe, *Z. Naturforsch.*, 1949, 4a, 542.
[10] Danguy, *Intern. J. Appl. Rad. Isot.*, 1957, **1**, 276.
[11] Danguy, Quivy, *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 320.
[12] Muller, *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 891.
[13] Muller, *Anal. Chem.*, U. S. A., 1957, **29**, 6, 969.
[14] Perey, Hettler, *C. R. Acad. Sc.*, 1956, **242**, 2552.

REVUE DES LIVRES

Le mécanisme des transformations de phase dans les métaux (The mechanism of phase transformations in metals.) Un symposium. (1 vol., 15 × 22 cm, 346 pages, nombreuses illustrations). The Institute of Metals, Londres, 1956 ; relié : shillings : 50 s (en anglais).

Dix-huit contributions, sans compter les interventions nées de la discussion, plus de 500 références, tel est le bilan d'un symposium examinant les transformations de phase dans les métaux (cobalt, étain) et dans les alliages à base de fer, d'aluminium, de cuivre, d'uranium ou de titane.

Deux processus essentiels sont passés en revue. Pour le premier dit de germination et croissance, il s'agit en particulier de préciser les caractéristiques des états les plus difficiles à étudier, ceux de trouble d'équilibre ou de pré-précipitation. Dans le second, rattaché à celui des transformations martensitiques, les mâcles jouent un rôle essentiel, comme tous les phénomènes associés aux plans cristallins les plus denses.

Dans les deux cas il faut, pour préciser les mécanismes fondamentaux, se détacher des observations à deux dimensions fournies par les microscopes optiques et électroniques et revenir au réseau tridimensionnel où se produisent les diffusions et les cisaillements.

Un volume indispensable pour l'étude de l'état métallique du double point de vue du chercheur et de l'utilisateur.

A.-R. Weill.

Audubert (R.) et De Mende (S.), **Les principes de l'électrophorèse** (1 vol., 14 × 19,5 cm, 201 p., Presses Universitaires de France, 1957, 1 500 F).

Cet ouvrage réunit les bases nécessaires à l'utilisateur de la technique d'électrophorèse et en particulier de l'électrophorèse sur support. Après un rappel des lois essentielles de l'électrochimie et de leur application aux systèmes dispersés, les auteurs exposent les principes des différents dispositifs expérimentaux utilisés pour la détermination des mobilités des particules — déplacement du ménisque, nombres de transport, méthode microscopique. Un chapitre consacré à la méthode de la surface de séparation mobile (Tiselius) rend parfaitement compte du principe et des conditions dans lesquelles doit se dérouler une expérience. Une description des différents dispositifs expérimentaux (notamment le dispositif très moderne existant au Centre d'Électrophorèse) et l'interprétation du phénomène complète ce chapitre.

La deuxième partie de cet ouvrage est consacrée à l'électrophorèse sur support. Après avoir précisé les conditions expérimentales, les auteurs étudient les différents paramètres qui entrent en jeu ; ils exposent les appareillages et les techniques et montrent que l'électrophorèse sur support est non seulement une méthode analytique mais peut être encore utilisée dans certaines conditions comme méthode de séparation et d'isolement de fractions pures d'un mélange.

Pour déterminer : les applications à la biologie (et à propos de l'introduction des isotopes les auteurs présentent succintement ce qu'il est indispensable de connaître pour pouvoir interpréter une expérience d'électrophorèse avec des éléments marqués) ; les applications du caractère médical et les séparations de composés organiques donnent un aperçu des divers domaines auxquels s'étend l'emploi de la technique de l'électrophorèse sur support.

M. B.

INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LES PHOTOMULTIPLICATEURS ET LES SCINTILLATEURS LIQUIDES

Par GILBERT LAUSTRIAT et ANDRÉ COCHE,
Laboratoire de Chimie Nucléaire, Faculté des Sciences de Strasbourg.

Résumé. — On a examiné l'effet de la température sur les compteurs à scintillateurs liquides : les photomultiplicateurs étudiés (6 Du Mont 6292 et 5 RCA 6342) présentent un coefficient négatif ; les scintillateurs considérés montrent une variation de même sens que les photomultiplicateurs, mais moins importante.

Abstract. — We have examined the temperature effect on liquid scintillation counters : the eleven photomultiplier tubes tested (6 Du Mont 6292 and 5 RCA 6342) all give negative temperature coefficients ; the scintillators used show a variation of the same kind as the photomultipliers, but less important.

Dans l'utilisation des compteurs à scintillations, il est important de connaître la manière dont sont affectées les mesures lors d'un changement de température du compteur, soit par suite d'une variation de température ambiante, soit qu'on refroidisse le photomultiplicateur en vue d'une diminution du bruit de fond. Un certain nombre de travaux (voir en particulier [1], [2], [3], [4]) ont été effectués à ce sujet, qui ont trait à l'influence de la température, soit sur le photomultiplicateur (PM), soit sur le scintillateur et qui conduisent à des conclusions parfois contradictoires. Ayant été amenés à refroidir un compteur à scintillateur liquide pour réduire le bruit de fond dans la détection de rayonnements β mous, nous avons examiné l'influence de la température sur la réponse du PM et sur celle du scintillateur.

I. **Dispositif expérimental.** — La figure 1 représente schématiquement le dispositif expérimental utilisé qui comprend deux enceintes calorifugées, l'une contenant la cuve remplie de scintillateur liquide, l'autre le photomultiplicateur, le diviseur de tension alimentant les dynodes et le préamplificateur à cathode asservie. Elles sont séparées par un conduit de lumière épais, en plexiglass parfaitement transparent, qui assure la transmission de la lumière émise dans le scintillateur jusqu'à la cathode du PM. Chaque enceinte peut être amenée à une température comprise entre + 50 et — 50 °C, par circulation forcée d'un courant d'air soigneusement desséché et refroidi par passage dans des bains réfrigérants (ou éventuellement réchauffé au contact d'un fil chauffé électriquement). La température est contrôlée à l'aide de résistances CTN placées en différents points et maintenue constante à ± 1 °C grâce à un dispositif de régulation automatique (1). Aux différentes températures choisies pour l'enceinte du PM ou pour celle du scintillateur, les impulsions correspondant aux scintillations créées par les électrons de conversion de ^{137}Ba ou par les rayons γ de ^{137}Cs sont, après amplification, triées par un sélecteur d'amplitude

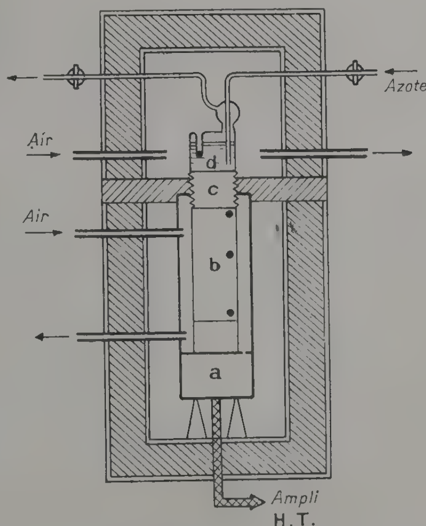


FIG. 1. — *a* : préamplificateur ; *b* : PM ; *c* : conduit de lumière ; *d* : scintillateur ; ● : emplacement des résistances CTN.

à un canal. Le déplacement des pics observés dans ces distributions d'impulsions permet de mettre en évidence l'influence de la température.

II. **Variation de la réponse du photomultiplicateur.** — Dans une première série d'expériences, nous avons examiné l'influence de la température sur le PM seul, l'enceinte supérieure contenant le scintillateur étant maintenue à température constante et

(1) Nous tenons à remercier ici M. R. Kraemer qui a réalisé ce dispositif.

dans tous les cas, voisine de + 30 °C. Cette étude a porté sur 6 photomultiplicateurs Du Mont 6292 et et 5 RCA 6342, le scintillateur utilisé étant une solution dans du xylène, soit de paradiphénylbenzène, soit de 2,5-diphényloxazole (4 g par litre).

Les variations de la hauteur d'impulsion avec la température sont représentées sur la figure 2 pour

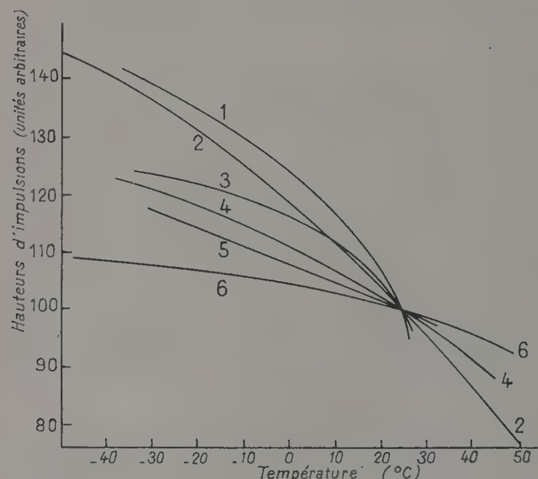


Fig. 2. — Résultats normalisés à + 25 °C.

les tubes 6292. Les courbes obtenues avec les PM 6342 présentent une allure analogue, avec cependant des écarts moins grands d'un tube à l'autre. Il faut noter que les températures indiquées sur ce graphique sont celles déterminées au niveau des dynodes : il existe en effet, un certain gradient de température dans l'enceinte du PM par suite de la conduction thermique dans le conduit de lumière (entre — 40 °C et 0 °C, les températures au niveau des dynodes et de la photocathode diffèrent d'une dizaine de degrés environ).

Les courbes de refroidissement montrent que les deux types de PM considérés présentent un coefficient de température négatif, ce qui est en accord, pour les tubes 6292, avec les observations de la plupart des auteurs, [3], [5], [6], mais en contradiction avec celles de Seliger [2] qui a trouvé un coefficient positif (²). Nous avons vérifié sur cinq PM 6292 et un PM 6342 que cette variation de la réponse du PM avec la température ne dépend pas de la tension appliquée entre dynodes, ce qui est en accord avec les expériences de Ball [4]. Le tableau I donne les coefficients de température moyens (en % par °C) pour les différents PM considérés.

(²) Les tubes RCA 6342 n'ont, à notre connaissance, fait l'objet d'aucune autre étude, mais les PM RCA 5819, 6655 et 6199 présentent également un coefficient de température négatif, [3], [4].

TABLEAU I

Du Mont 6292		RCA 6342	
n° 1	0,70 ± 0,05	n° 1	0,50 ± 0,05
2	0,57 ± 0,05	2	0,47 ± 0,05
3	0,42 ± 0,05	3	0,43 ± 0,05
4	0,42 ± 0,05	4	0,25 ± 0,05
5	0,29 ± 0,05	5	0,23 ± 0,05
6	0,17 ± 0,05		

Nous avons également tracé des courbes de réchauffement d'un certain nombre des PM étudiés et constaté un phénomène d'hystérésis qui disparaît au bout de quelques heures. L'un des PM 6292 a été refroidi à cinq reprises consécutives à quelques jours d'intervalle et a montré dans tous les cas la même variation.

La question essentielle qui se pose est de savoir quelle partie du photomultiplicateur est responsable de cet effet de température. Dans ce but, nous avons d'abord vérifié, en refroidissant seulement le diviseur de tension et le préamplificateur, que la variation de température était sans effet important sur ces deux parties. Nous avons ensuite modifié le dispositif décrit plus haut de manière que la photocathode émerge dans l'enceinte supérieure, les dynodes étant maintenues dans l'enceinte inférieure. En opérant dans ces conditions pour les deux PM de chaque type qui présentent le coefficient de température le plus élevé, nous avons constaté les effets suivants :

a) en refroidissant seulement l'enceinte inférieure (dynodes), on retrouve la variation obtenue pour le PM tout entier ;

b) en refroidissant l'enceinte supérieure (photocathode et scintillateur) et en maintenant constante la température de l'enceinte inférieure, la variation est égale à celle trouvée lorsqu'on refroidit le scintillateur seul (voir paragraphe III) ;

c) en refroidissant simultanément les deux enceintes, la variation observée est égale à la somme des variations obtenues dans les cas (*a*) et (*b*).

Il ressort de ces expériences que les dynodes semblent être, en très grande partie, responsables de l'effet de température. Kinard [3] dans une expérience du type *a*), mais effectuée avec un cristal INa(Tl) ne retrouve pas intégralement la variation obtenue pour le PM tout entier ; ceci pourrait être dû au fait que, par suite du gradient de température important signalé par l'auteur, la valeur indiquée par le thermocouple était inférieure à la température moyenne des dynodes. Une expérience du type *b*) lui donne d'ailleurs des résultats identiques aux nôtres.

Pour expliquer l'anomalie obtenue par Seliger, Meessen [7] indique, suivant une idée déjà exprimée par Boeschoten [8], que le coefficient de température varierait avec la longueur d'onde de la lumière tombant sur la cathode (et serait positif pour le rouge, négatif pour le bleu). Signalons à ce

propos qu'en utilisant une solution de terphényl dans le xylène (longueur d'onde moyenne d'émission 3 600 Å) et une solution de terphényl + POPOP dans le même solvant (longueur d'onde moyenne d'émission 4 440 Å), nous avons observé dans les deux cas la même variation de hauteurs d'impulsion entre + 33 et — 38 °C.

III. **Effet de température sur le scintillateur liquide.** — Avec le dispositif décrit plus haut, nous avons déterminé la variation de la hauteur d'impulsion lorsque la température du scintillateur liquide varie entre + 40 et — 30 °C, celle de l'enceinte contenant le PM étant maintenue constante au niveau des dynodes. Nous avons étudié les solutés suivants dissous dans du toluène purifié :

2,5-diphényloxazole (PPO)	3 g par litre
2-(1-naphtyl)-5-phényloxazole (αNPO)	3 g par litre
Paradiphénylbenzène (TP)	4 g par litre (3)
2 - phényl - 5 - (4 - biphényl) - 1, 3, 4 - oxadiazole (PDB)	5 g par litre

Des précautions particulières ont été prises pour éliminer les traces d'eau, présentes dans les solvants organiques et suffisantes pour provoquer au cours du refroidissement un louche intense. A cet effet, le toluène utilisé a été distillé en présence de sodium, recueilli et conservé en atmosphère sèche.

La variation de la hauteur d'impulsion est représentée pour les différentes solutions sur les figures 3

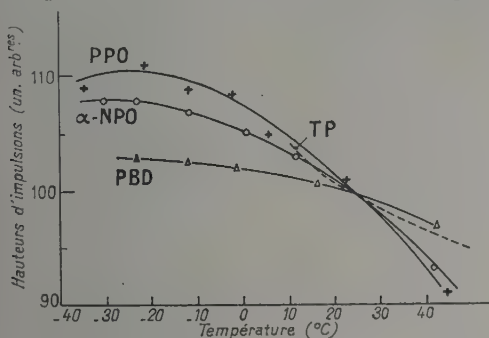


Fig. 3. — Résultats normalisés à + 25 °C.

et 4 suivant qu'on opère en atmosphère d'air ou d'azote (par barbotage du gaz privé d'oxygène). Le déplacement de l'oxygène dissous entraîne, à température ordinaire, une augmentation de 30 % environ de la hauteur d'impulsion, comme de nombreux auteurs l'ont signalé. Ces figures montrent un effet de température différent suivant qu'on est en atmosphère d'air ou d'azote : dans le premier cas, la variation de hauteur d'impulsion est de l'ordre de 20 % dans l'intervalle de température + 45, — 30 °C (sauf pour les solutions de PBD) ; dans le deuxième cas, elle est considérablement plus faible et semble même changer de sens pour des températures inférieures à — 10 °C environ.

(3) A cause de la faible solubilité de ce soluté, les expériences sur cette solution ont été limitées à + 7 °C.

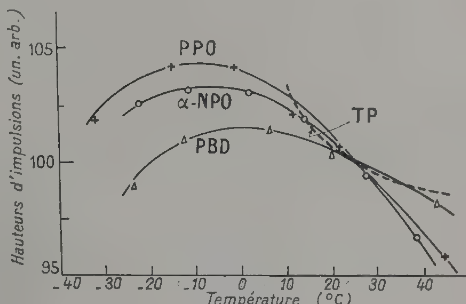


Fig. 4. — Résultats normalisés à + 25 °C.

Ces résultats ne sont pas en accord quantitatif avec ceux de Seliger qui a trouvé des coefficients de température beaucoup plus grands. Ces divergences pourraient provenir du fait que cet auteur a refroidi l'ensemble scintillateur + PM et attribue au PM seul un coefficient de température positif, comme nous l'avons indiqué au paragraphe précédent.

Conclusion. — Il ressort de ces expériences qu'au cours du refroidissement d'un compteur à scintillations, l'effet de température affecte principalement le PM, conduisant, en plus de la réduction du bruit de fond, à une augmentation importante de la hauteur d'impulsion. Cet effet semble se produire essentiellement au niveau des dynodes. Par contre, il paraît beaucoup moins intéressant de refroidir le scintillateur liquide en raison du faible coefficient de température et des difficultés techniques rencontrées (utilisation de solvants anhydres, moindre solubilité des solutés et dans le cas de mesures nombreuses, lenteur des opérations due à la nécessité d'attendre la réalisation de l'équilibre thermique).

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Chimie Nucléaire de la Faculté des Sciences de Strasbourg. Nous remercions Mlle Perey, Directeur du Laboratoire, d'avoir mis à notre disposition les moyens nécessaires à la réalisation de ces expériences.

Manuscrit reçu le 22 juillet 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Beyster (J. R.), Henkel (R. L.), Nobles (R. A.) et Kister (J. H.), *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1216.
[2] Seliger (H. H.) et Ziegler (C. A.), *Nucleonics*, 1956, **14**, no 4, 49.
[3] Kinard (F. E.), *Nucleonics*, 1957, **15**, no 4, 92.
[4] Ball (W. P.), Booth (R.) et MacGregor (M.), *Nuclear Instruments*, 1957, **1**, no 2, 71.
[5] Webb (L. A.), USNRDL, 1955, TR-48, NS 081001.
[6] Herold, Kropp et Stutheit, *E. I. Du Pont de Nemours*, 1956, DP-47.
[7] Meessen (A.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, no 4, 437.
[8] Boeschoten (F.), Milatz (J. M. W.) et Smit (C.), *Physica*, 1954, **XX**, 139.

INFLUENCE DE L'ÉTAT DE SURFACE SUR LA MESURE DE LA LONGUEUR DE DIFFUSION SUR LE SILICIUM

Par P. GOSAR [1],

Laboratoire du Magnétisme et de Physique du Corps Solide C. N. R. S., Bellevue.

et H. MÉNACHÉ,

Département « Physique, Chimie, Métallurgie »
du Centre National d'Études des Télécommunications, Issy-les-Moulineaux.

Résumé. — On étudie l'influence de différents effets de surface sur la mesure de la longueur de diffusion par la méthode de la fente lumineuse (Méthode Valdès) sur le silicium. L'étude théorique et expérimentale montre l'importance que peuvent prendre les courants dans la couche d'inversion à la surface pour l'interprétation des résultats expérimentaux.

Abstract. — The influence of different surface effects on the measurement of the diffusion length by the travelling light spot method (Valdes Method) on silicon is discussed. The theoretical and experimental investigation shows the importance of currents in the inversion layer of the surface for the interpretation of experimental results.

I. **Considérations théoriques.** — L'effet de l'état de surface d'un semiconducteur sur la mesure de la longueur de diffusion des porteurs minoritaires par la méthode Goucher-Valdès [1, 2] est triple :

a) La recombinaison superficielle change la distribution des porteurs minoritaires autour de la source linéaire sur la surface de l'échantillon. L'effet de la recombinaison superficielle sur la distribution a été calculé par Van Roosbroeck [3] : Si on considère la courbe donnant le logarithme de la concentration des porteurs minoritaires en fonction de la distance à la source, la pente de cette courbe pour des distances grandes devant la longueur de diffusion ne dépend pas de la vitesse de recombinaison en surface s mais est déterminée seulement par la longueur de diffusion. La recombinaison superficielle vient juste changer la hauteur du signal, sans changer sa forme. Au contraire pour des petites distances, l'effet de la recombinaison sur la forme de la courbe est très important.

Cronemeyer [4] a calculé des familles de courbes pour différentes longueurs de diffusion et vitesses de recombinaison en surface.

b) L'effet « Channel » autour de la sonde ponctuelle. Si on a sur la surface du semiconducteur une couche d'inversion en contact électrique avec la sonde, celle-ci peut capturer les porteurs minoritaires à une distance r_0 égale à la longueur du channel formé autour du point. Ici le signal mesuré ne donne pas la concentration des porteurs minoritaires sous la sonde, mais une valeur moyenne de la concentration dans le cercle de rayon r_0.

Supposons la surface plane du semiconducteur grande devant la longueur de diffusion et la longueur du channel. Prenons un système de coordonnées dont le plan xy est sur la surface, l'axe y parallèle à la source linéaire, et l'axe z étant orienté vers l'extérieur. Soit $x = 0$, $y = 0$ la position de la sonde, et $x = a$ la position de la zone éclairée. La concentration superficielle des porteurs minoritaires en excès autour de la source linéaire est donnée par une fonction $f(x - a)$.

Le signal $S(a)$ mesuré par la sonde est, en présence du channel, proportionnel à :

$$S(a) \approx 2 \int_{-r_0}^{+r_0} f(x - a) \sqrt{r_0^2 - x^2} \, . \, \mathrm{d}x. \qquad (1)$$

Si la longueur du channel est grande devant la longueur de diffusion, on peut négliger complètement la diffusion. On obtient approximativement :

$$S(a) \approx 2 \sqrt{r_0^2 - a^2}. \qquad (2)$$

Log $S(a)$ en fonction de a est au début de la courbe une parabole. Pour $a > r_0$ le signal disparaît.

Si r_0 est petit devant la longueur de diffusion, le signal $S(a)$ diffère sensiblement de $f(-a)$ uniquement aux points où la courbure de la courbe est grande, surtout au sommet de la courbe. Quand la courbure est positive, le signal augmente ; quand la courbure est négative, le signal diminue. L'augmentation ou la diminution relative du signal est proportionnelle à

$$\frac{r_0^2}{10} \frac{\mathrm{d}^2 f(a) / \mathrm{d}a^2}{f(a)}. \qquad (3)$$

[1] P. Gosar est détaché de l'Institut « Jozef Stefan », Ljubljana, Yougoslavie.

Le changement relatif du signal est proportionnel à r_0^2.

La longueur du channel augmente avec la tension inverse appliquée. La dépendance de la longueur r_0 avec la tension V a été calculée pour le cas linéaire (cas du channel dans une jonction p-n) par Cutler et Bath [5, 6] et Kingston [7]. Cutler et Bath supposent que la résistivité du channel et la densité du courant de la jonction p-n entre la masse et la couche superficielle ne dépendent pas de la tension inverse. Au contraire, Kingston suppose une augmentation linéaire de la résistivité du channel avec la tension appliquée. Aigrain [8] a fait un calcul analogue pour le cas d'une symétrie radiale. Soit j_0 la densité du courant de saturation de la jonction n-p formée par la masse du semiconducteur et la couche superficielle. Nous supposerons que j_0 ne dépend pas de la polarisation de la jonction. La densité de courant dans la couche superficielle à la distance r de la sonde est :

$$i(r) = j_0 \frac{1}{2r}(r_0^2 - r^2). \quad (4)$$

Si R est la résistivité de la couche superficielle, la variation de tension $V(r)$ avec la distance r s'écrit :

$$\frac{\mathrm{d}V(r)}{\mathrm{d}r} = - j_0 R \frac{1}{2r}(r_0^2 - r^2). \quad (5)$$

Si R ne dépend pas de la tension $V(r)$ on obtient par intégration de l'équation (5) une équation donnant la longueur du channel r_0 en fonction de la polarisation $V(r_1)$ de la sonde :

$$V(r_1) = (1/2)\, j_0 R[r_0^2 \ln (r_0/r_1) - (1/2)(r_0^2 - r_1^2)], \quad (6)$$

où r_1 est le rayon de la sonde. Nous voyons que r_0 augmente un peu plus lentement que $\sqrt{V(r_1)}$.

Si au contraire on suppose une variation linéaire de la résistivité superficielle R avec la tension $V(r)$ on obtient pour r_0 une équation semblable à (6) mais ici r_0 augmente un peu plus lentement que $\sqrt{\ln V(r_1)}$.

c) L'effet combiné de la recombinaison superficielle et de la conductivité superficielle sur la distribution des porteurs minoritaires autour de la source linéaire.

Dans le cas *a*) nous avions considéré uniquement la recombinaison simple à la surface. Ici, le courant de diffusion des porteurs minoritaires vers la surface est égal au courant d'électrons dû à la génération ou à l'absorption des paires électron-trou par les niveaux de recombinaison situés sur la surface.

Supposons l'échantillon de type n. La densité du courant de diffusion des trous en direction de la surface est

$$i_d(x, y) = - eD_p \frac{\partial p(x, y, 0)}{\partial z}, \quad (7)$$

où e est la charge élémentaire, D_p est la constante de diffusion des trous, et $p(x, y, z)$ la concentration des trous à l'endroit (x, y, z).

La recombinaison des paires est proportionnelle à l'excès de la concentration des trous près de la surface. Le courant de recombinaison, dans le cas d'une injection de porteurs faible, s'écrit :

$$i_r(x, y) = - es[p(x, y, 0) - p_0], \quad (8)$$

où s est la vitesse de recombinaison superficielle et p_0 la concentration normale des trous dans la masse du semiconducteur.

Si on a une forte couche d'inversion à la surface du semiconducteur, l'égalité entre le courant de diffusion $i_d(x, y)$ et le courant de recombinaison $i_r(x, y)$ n'est pas nécessaire. On peut avoir des courants dans la couche d'inversion qui compensent la différence entre i_d et i_r. C'est Moore et Webster [9] qui ont montré pour la première fois l'importance que peut prendre l'existence de ces courants dans la mesure de la longueur de diffusion. Ces auteurs ont étudié la recombinaison effective à la surface d'un échantillon de germanium ayant une « floating barrier ». Les conclusions principales sont valables pour le cas traité ici. Nous donnons un calcul quantitatif du phénomène.

Les équations (7) et (8) sont également valables ici si on déplace le système de coordonnées d'une profondeur d, parallèlement à la surface, correspondant approximativement à la zone chargée de la couche d'inversion. La génération des paires électron-trou dans l'espace chargé de la barrière superficielle peut alors être incluse dans la constante s de la vitesse de recombinaison en surface.

La vitesse de recombinaison superficielle dépend de la densité des centres de recombinaison en surface, de leur section efficace de capture, et du potentiel de surface V (V est le relèvement des bandes d'énergie à la surface, par rapport à la masse du semiconducteur). Dans notre cas précis où nous avons fait rentrer dans s la génération à l'intérieur de la zone chargée, s dépendra aussi de la durée de vie de l'échantillon.

Soit $\vec{i}(x, y)$ la densité de courant superficiel de trous (c'est le courant total de trous passant dans une section normale de la couche superficielle sur une longueur unité). Si on a une forte inversion, le courant d'électrons dans la couche superficielle est négligeable, et $\vec{i}(x, y)$ représente le courant total dans la couche.

A partir de la relation entre $\vec{i}(x, y)$, $i_d(x, y)$ et $i_r(x, y)$ on obtient :

$$-\operatorname{div} \vec{i}(x, y) = es[p(x, y, 0) - p_0] + eD_p \frac{\partial p(x, y, 0)}{\partial z}. \quad (9)$$

L'équation (9) seule ne suffit pas à calculer la distribution des trous dans le semiconducteur. Il

est nécessaire d'obtenir encore une relation entre $\vec{i}(x, y)$ et $p(x, y, 0)$. On obtient cette relation de la manière suivante :

L'allure du potentiel électrostatique $\psi(x, y, z)$ de la zone chargée est entièrement déterminée par la concentration des porteurs minoritaires $p(x, y, 0)$ et par le potentiel superficiel $V(x, y)$.

Si on suppose un équilibre de Boltzmann entre les électrons et les trous, on obtient par intégration de l'équation de Poisson une expression pour le champ électrique $E_z = -\frac{\partial \psi}{\partial z}$ en un point quelconque de la zone chargée (Garrett et Brattain [10], Johnson [11]) :

$$\frac{\partial Y'}{\partial z} = \pm F(Y', \delta) ;$$

$$F(Y', \delta) = \sqrt{\lambda(e^{-Y'} - 1) + \lambda^{-1}(e^{Y'} - 1) + (\lambda - \lambda^{-1}) Y' + (e^{Y'} + e^{-Y'} - 2) \delta} \quad (10)$$

où $Y' = \frac{e\psi}{kT}$ est le potentiel mesuré en unités $\frac{kT}{e}$, k constante de Boltzmann, T température absolue ; $\delta = \frac{p(x, y, o) - p_0}{n_i}$ est le rapport entre la concentration des porteurs minoritaires en excès et la concentration intrinsèque n_i ; $\lambda = p_0/n_i$ est le facteur de dopage : c'est le rapport entre la concentration normale des trous p_0 à l'intérieur du semiconducteur et la concentration intrinsèque n_i ; $L = \sqrt{\frac{\varepsilon kT}{2\pi n_i e^2}}$ est la longueur de Debye avec ε constante diélectrique du semiconducteur. On prend dans la formule (10) le signe + si $Y' > 0$ et le signe — si $Y' < 0$.

La densité du courant de trous dans la direction x au point (x, y, z) de la couche superficielle est égale à :

$$i_x(x, y, z) = - e \mu_{eff} \, p(x, y, z) \frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial x}, \quad (11)$$

où μ_{eff} est la mobilité effective des trous (Schrieffer [12], [13]) et $\varphi_p(x, y, z)$ le pseudo-potentiel de Fermi, qui est constant dans la couche chargée ; c'est pourquoi on prend $z = 0$ dans l'équation (11). La concentration $p(x, y, z)$ est :

$$p(x, y, z) = n_i \lambda (1 + \lambda^{-1} \delta) e^{-Y'}. \quad (12)$$

Introduisant (12) dans l'équation (11) on obtient par intégration à travers la couche superficielle l'expression suivante, pour la densité $i_x(x, y)$ du courant superficiel :

$$i_x(x, y) = \frac{1}{2} Le \mu_{eff} n_i \lambda (1 + \lambda^{-1} \delta) \frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial x} \int_0^Y \frac{e^{-Y'}}{F(Y', \delta)} \, dY',$$

où

$$Y = eV/kT. \quad (13)$$

Nous obtenons une expression analogue pour le courant dans la direction y.

Nous définissons la résistivité superficielle R par l'équation :

$$\vec{i}(x, y) = -\frac{1}{R} \left[\frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial x}, \frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial y}, 0 \right]. \quad (14)$$

L'expression (13) donne la formule suivante pour $1/R$:

$$\frac{1}{R} = -\frac{1}{2} Le \mu_{eff} n_i \lambda (1 + \lambda^{-1} \delta) \int_0 \frac{e^{-Y'}}{F(Y', \delta)} \, dY'. \quad (15)$$

Nous considérons seulement le cas d'une injection faible de porteurs minoritaires ($\lambda^{-1} \delta \ll 1$). On peut alors dans la formule (15) négliger les termes en δ. Dans ce cas, la résistivité superficielle calculée par (15) diffère très peu de la résistivité superficielle calculée dans le phénomène de l'effet de champ.

Dans la mesure de la longueur de diffusion, on tient compte du courant superficiel seulement si on a une forte inversion. Dans ce cas on peut alors en plus supposer $\lambda e^{-Y} \gg 1$. On déduit approximativement

$$R = \frac{1}{Le \mu_{eff} n_i} \frac{e^{-Y_0}}{F(Y_0, 0)}, \quad (16)$$

où Y_0 est le potentiel à la surface pour $\delta = 0$.

On obtient une formule analogue pour un semiconducteur de type p si on change λ en λ^{-1} et Y_0 en $-Y_0$.

La résistivité superficielle diminue avec l'augmentation de $|Y_0|$. Prenons par exemple du silicium de type n : $\rho = 100$ ohm.cm ($\lambda = 1.5 \, 10^{-3}$),

$$n_i = 6.8 \, 10^{10} \text{ cm}^{-3}, \; L = 5.8 \, 10^{-3} \text{ cm},$$

$$\mu_{eff} = 100 \text{ cm}^2/\text{V.s}.$$

On obtient $R = 2{,}0.10^5$ ohms pour $Y_0 = -20$ et $R = 3{,}3.10^8$ ohms pour $Y_0 = -10$. Pour le germanium n_i et en général λ sont plus grands. Cela diminue R d'un facteur au moins 5.10^2. Mais d'un autre côté les potentiels $|Y_0|$ à la surface sont plus petits pour le germanium. Finalement la résistivité superficielle pour le germanium peut être du même ordre de grandeur que pour le silicium.

Il reste encore à déterminer la relation entre $\partial \varphi_p / \partial x$ et $\partial p / \partial x$. La position du pseudo-niveau de Fermi par rapport au centre de la bande interdite est donnée par la relation :

$$\varphi_p(x, y, 0) = \frac{kT}{e} \ln \left[\frac{p(x, y, 0)}{n_i} \right], \quad (17)$$

d'où on tire pour une faible injection :

$$\frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial x} = \frac{kT}{e} \frac{1}{n_i \lambda} \frac{\partial p(x, y, 0)}{\partial x}. \quad (18)$$

Il est intéressant de chercher la relation entre δ et Y d'une part, et $\partial V(x, y)/\partial x$ et $\partial \varphi_p(x, y, o)/\partial x$ d'autre part. Ces relations dépendent des conditions

à la surface. Dans la mesure de la longueur de diffusion par la méthode Valdès, les variations de δ dans le temps sont trop rapides pour avoir une influence sur les états lents de la surface. On peut supposer que le nombre de ces états lents est normalement beaucoup plus grand que le nombre des états rapides. On ne fait pas une grande erreur si on suppose la constance de la charge à la surface (Johnson [14], voir aussi Garret et Brattain [10]). Donc $\frac{\partial Y'(x, y, d)}{\partial z}$ est constant.

Des formules (10) et (18) on déduit, dans le cas d'une forte inversion et de la constance de la charge superficielle, le résultat intéressant :

$$\delta = \lambda(Y - Y_0) \quad \text{(Johnson [14])},$$

$$\frac{\partial \varphi_p(x, y, 0)}{\partial x} = \frac{\partial V(x, y)}{\partial x}. \tag{19}$$

On voit que le gradient du pseudo-potentiel de Fermi est égal au gradient du potentiel superficiel.

En combinant les équations (9), (14), (18) on obtient l'équation différentielle :

$$\frac{kT}{eR}\frac{1}{n_i \lambda}\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) p(x, y, 0) = es[p(x, y, 0) - p_0] + eD_p \frac{\partial p(x, y, 0)}{\partial z}, \tag{20}$$

qui représente la condition aux limites pour la diffusion des trous dans la masse du semiconducteur. Il est possible de résoudre l'équation différentielle de diffusion

$$\Delta p(x, y, z) - \frac{p(x, y, z) - p_0}{L_p^2} = 0, \tag{21}$$

où L_p est la longueur de diffusion pour les trous, en tenant compte de la condition aux limites (20) dans le cas d'une source linéaire à la position $x = 0$, $z = 0$, en faisant une transformation combinée Fourier-Laplace de $p(x, y, z)$ (Annexe I). Nous obtenons la formule suivante pour l'excès de concentration des trous près de la surface :

$$p(X, Y, 0) - p_0 \approx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-i\eta X}}{S + D^2 \eta^2 + \sqrt{1 + \eta^2}} \, d\eta. \tag{22}$$

Dans cette formule les coordonnées sont mesurées en unités de longueur de diffusion, c'est-à-dire $X = x/L_p$, $Y = y/L_p$, $Z = z/L_p$; S est la vitesse de recombinaison en surface mesurée en unités de vitesse de diffusion :

$$S = s/v_d \, ; \qquad v_d = L_p/\tau \, ; \qquad D = l/L_p \, ;$$

l est une longueur caractéristique pour la surface :

$$l = \sqrt{\frac{R_0}{R}} \, ; \qquad R = \frac{L_p}{eD_p \, p_0} \cdot \frac{kT}{e}. \tag{23}$$

R_0 est la résistivité différentielle de la jonction superficielle due à la diffusion des porteurs minoritaires dans la masse du semiconducteur, pour une polarisation nulle.

Quand $s = 0$ et $R = \infty$, on tire de la formule (22) :

$$p(X, Y, 0) - p_0 \approx K_0(X). \tag{24}$$

C'est l'expression de Valdès pour la distribution de porteurs minoritaires dans le cas d'une surface idéale.

Si on prend seulement $R = \infty$, c'est-à-dire $D = 0$, il est facile de démontrer que la formule (22) est identique à la formule de Roosbroeck obtenue dans le cas d'une recombinaison simple à la surface (Annexe II).

Il est nécessaire de calculer numériquement l'intégrale (22). On va considérer le cas intéressant $D > 1$ ($l > L_p$). Nous pouvons alors négliger dans le dénominateur de l'intégrale η^2 devant 1. Par intégration on obtient :

$$p(X, Y, 0) - p_0 \approx \frac{1}{D\sqrt{S+1}} e^{-\frac{\sqrt{S+1}}{D} \cdot |X|}. \tag{25}$$

La distribution de la concentration des porteurs minoritaires à la surface est exponentielle. La longueur l_0 pour laquelle la concentration s'abaisse d'un facteur e est égale à :

$$l_0 = \frac{l}{\sqrt{S+1}} = \frac{1}{\sqrt{R}} \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{R_0} + esp_0 \frac{e}{kT}}}. \tag{26}$$

L'expression $\frac{1}{R_0} + esp_0 \frac{e}{kT}$ représente la conductivité différentielle de la jonction superficielle pour une polarisation nulle, due à la diffusion et à la recombinaison des porteurs à la surface.

On voit que la mesure de la concentration des porteurs minoritaires autour de la source linéaire peut donner des résultats complètement erronés pour la longueur de diffusion.

Le cas $D > 1$ est fréquent sur les surfaces de silicium, mais peu probable sur le germanium. Si on calcule la résistivité R_0 due à la diffusion des porteurs minoritaires, on obtient pour du silicium type n, de résistivité 100 ohm.cm, de durée de vie 10 µs, $R_0 = 1.5 \; 10^6$ ohm.cm². Pour du germanium type n, résistivité 1 ohm.cm, durée de vie 100 µs, on trouve $R_0 = 600$ ohm.cm². C'est ce qui explique pourquoi il n'y a pas de difficultés dues à la conductivité superficielle dans les mesures de longueur de diffusion sur le germanium.

II. **Partie expérimentale.** — Interprétation des résultats de mesures.

Nous avons fait des mesures de longueur de diffusion sur plusieurs échantillons de silicium, type n et p, de résistivité comprise entre 0,5 ohm.cm et

200 ohm.cm, après différents traitements de surface.

Avant la mesure les échantillons ont été polis mécaniquement à l'aide d'un abrasif très fin (oxyde de cérium), puis décapés chimiquement avec une solution contenant 4 parties HNO_3 et 1 partie HF. Les premières mesures ont porté sur l'étude de l'atmosphère entourant le cristal. Nous avions construit à cet effet une boîte étanche, dans laquelle on pouvait faire un vide poussé (10^{-6} mm Hg) ou introduire une certaine quantité de gaz ou de vapeur. On sait que l'adsorption de molécules d'eau ou d'acétone à la surface d'un semiconducteur doit donner une charge superficielle positive [15]. Or, la comparaison des mesures sous vide, dans l'air ou dans une atmosphère de vapeurs d'eau ou d'acétone sur un échantillon type p n'a pas donné de résultats bien définis. On n'a pas observé d'effet channel marqué autour de la sonde. Il est connu que les longueurs de channel pour le silicium sont normalement beaucoup plus petites que pour le germanium [6]. Pour observer l'effet combiné de la recombinaison superficielle et de la conductivité superficielle, la couche d'inversion n'était pas suffisamment développée, car le phénomène devient visible quand la longueur caractéristique est égale ou supérieure à la longueur de diffusion.

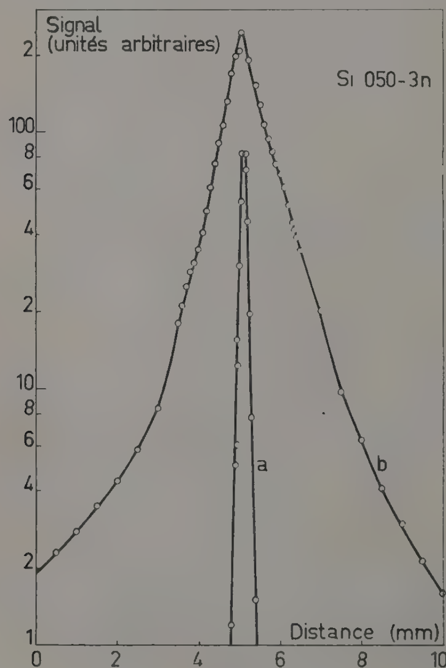


Fig. 1.

En vue de diminuer la vitesse de recombinaison en surface, Hogarth [4] a appliqué différents traitements chimiques à la surface dans ses mesures de longueur de diffusion. Cette méthode, développée par Moore et Nelson [16] consistait en de fortes oxydations ou de fortes réductions de la surface suivant le type de l'échantillon. C'est ainsi qu'avec une oxydation de la surface du silicium type p ou une réduction sur du type n, on pouvait supprimer la couche d'inversion et créer même une couche p^+ ou n^+, ce qui devait diminuer la recombinaison superficielle.

Nous avons appliqué les mêmes traitements, mais en sens inverse, dans le but d'augmenter le potentiel de surface et voir ainsi l'influence d'une forte couche d'inversion sur la mesure de la longueur de diffusion.

La figure 1 montre les résultats de mesure sur un échantillon de silicium de type n et de résistivité 15 ohm.cm avant (courbe *a*) et après (courbe *b*) un traitement au bichromate de sodium. L'échantillon a été simplement mouillé avec une solution à 2 % de bichromate, puis laissé sécher à l'air. On obtient avec ce traitement une couche visible de bichromate sur la surface. L'effet du traitement est ici très grand et peut être interprété par le mécanisme de la conductivité superficielle. Il est évident qu'il n'y a pas ici d'effet channel autour de la sonde. La courbe est assez bien exponentielle en accord avec la formule (25). On en déduit $l = 0{,}6 - 0{,}8$ mm. La longueur de diffusion réelle est $L_p = 0{,}08$ mm.

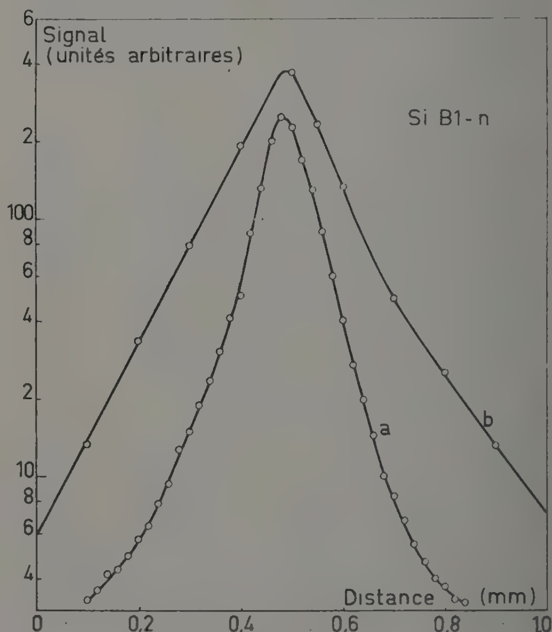


Fig. 2.

Il est très difficile par cette méthode d'obtenir une oxydation uniforme de la surface. C'est à cause de cette non-uniformité que les courbes

obtenues ne sont ni symétriques ni régulières. Nous avons essayé un autre procédé de traitement. On laisse l'échantillon dans la solution de bichromate pendant un ou deux jours, puis on le sèche avec du papier filtre. Ici la couche de bichromate n'est plus visible. L'oxydation de la surface est en général plus uniforme. L'effet de ce traitement sur la mesure est le même que le précédent. Un exemple de traitement d'un jour avec le bichromate de sodium est donné sur la figure 2. La courbe *b* représente les résultats après traitement, la courbe *a* les mesures sur l'échantillon non traité. Le silicium est de type n, de résistivité 0,5 ohm.cm.

Nous avons fait des mesures avec différentes polarisations de la sonde. Si l'échantillon est soigneusement décapé, la forme de la courbe ne change pas avec la polarisation. Simplement le signal augmente quand la polarisation augmente ; en effet la caractéristique du contact pointe-silicium ne présente pas de saturation comme c'est le cas pour le germanium. Mais on peut supposer que le courant à travers la pointe est proportionnel à la concentration des trous sous la sonde.

Quand la surface de l'échantillon est fortement traitée, on observe au contraire que la forme des courbes mesurées varie avec la polarisation. Deux exemples sont donnés sur les figures 3 et 4. L'échantillon de la figure 3 est de type n, résistivité

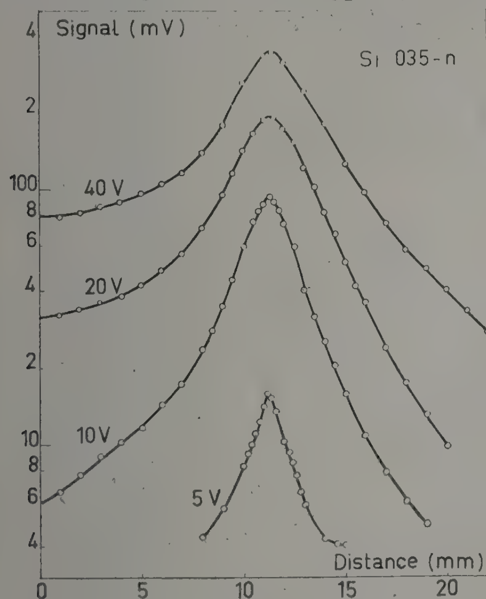


Fig. 3.

200 ohm.cm, longueur de diffusion $L_p = 0{,}06$ mm. Sur cette figure nous n'avons pas tracé la courbe pour le cas sans traitement parce qu'elle est trop étroite. L'échantillon de la figure 4 est aussi de type n, avec une résistivité 15 ohm.cm et une longueur de diffusion $L_p = 0{,}08$ mm. La courbe *a* représente le cas sans traitement. On observe sur les deux figures une grande asymétrie des courbes, due à la non-uniformité de l'oxydation. Sur ces courbes, les parties ayant les pentes les plus faibles varient beaucoup plus avec la polarisation que les parties de grande pente, à part le sommet.

Une partie de ces anomalies peut être expliquée par l'effet channel. Si on admet que le channel autour de la pointe augmente avec la polarisation, il est normal de voir le palier au sommet des courbes augmenter avec la polarisation, comme cela se produit sur la figure 3. Mais expliquer les parties éloignées des courbes de la figure 3 et plus encore celles de la figure 4 par l'effet channel est difficile. Nous pensons que la sonde est en contact électrique avec les états lents situés à l'extérieur de la couche d'oxyde sur la surface du silicium. Or le changement de polarisation de la sonde change la charge dans ces états lents. Dans les parties de la surface où la pente de la courbe mesurée est

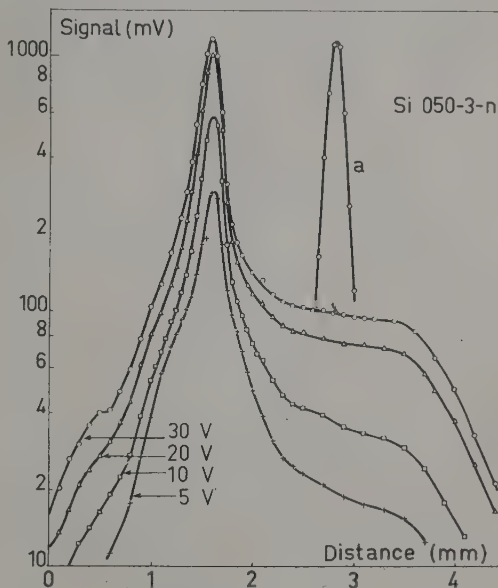


Fig. 4.

plus faible, la concentration des états lents et la charge superficielle sont plus grandes que dans les autres parties, donc celle-ci varie plus avec la polarisation. Comme la conductivité de la couche d'inversion augmente avec la charge superficielle, on retrouve finalement les résultats expérimentaux, On peut admettre une conductivité extrêmement faible dans les états lents, ainsi les courants à travers la couche d'oxyde sont négligeables.

Nous avons fait des mesures sur des surfaces traitées en superposant un éclairage continu sur l'échantillon. L'éclairage augmente fortement la pente des courbes et diminue la grandeur du signal.

Un exemple est donné sur la figure 5 où la courbe *a* est obtenue sans éclairage, la courbe *b* avec un éclairage faible. Pour de forts éclairages, le signal disparaît complètement dans le bruit. L'échantillon de la figure 5 est de type n, de résistivité 15 ohm.cm et a une longueur de diffusion de 0,08 mm ; il était traité au bichromate de sodium.

Il est facile d'expliquer l'effet de la lumière continue. L'éclairage diminue le potentiel superficiel et cause ainsi une augmentation de la résistivité superficielle R et une diminution de l_0. La diminution du signal est provoquée par la diminution du channel autour de la sonde, ou par la non-linéarité de la caractéristique de la sonde. La disparition du channel est bien visible sur la figure 5.

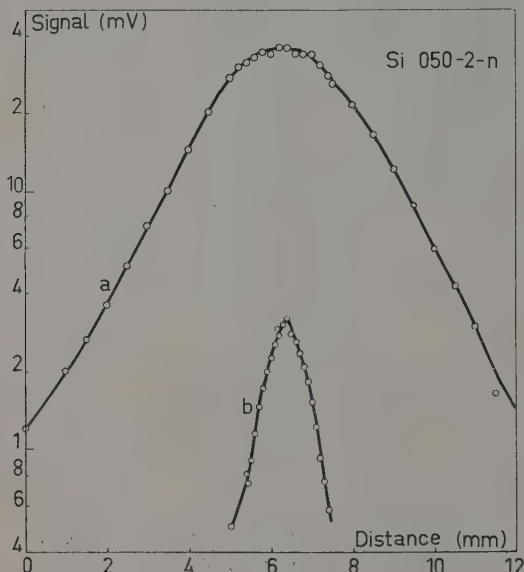


Fig. 5.

Des mesures analogues ont été faites sur des échantillons de type p, traités avec le bisulfite de sodium ou le bisulfite de potassium pour obtenir une réduction de la surface. On retrouve exactement les mêmes phénomènes que précédemment, mais ici il est plus difficile d'obtenir une réduction uniforme de la surface.

On a observé sur quelques échantillons l'existence d'une forte couche superficielle juste après le décapage à HNO_3 et HF (voir aussi [17]).

La figure 6 montre les mesures pour différentes polarisations de la sonde, sur du silicium type p, de résistivité 70 ohm.cm, juste après un décapage. Or, la durée de vie de l'échantillon, mesurée par décroissance de la photoconductivité, est d'environ 30 µs, ce qui correspond à une longueur de diffusion d'environ 0,3 mm.

Les longueurs L_n déduites des courbes de la figure 6 sont beaucoup plus grandes. En faisant une série de décapages successifs, on finit par retrouver la vraie longueur de diffusion 0,3 mm. L'effet channel, qui est bien visible sur la figure 6, disparaît de la même manière.

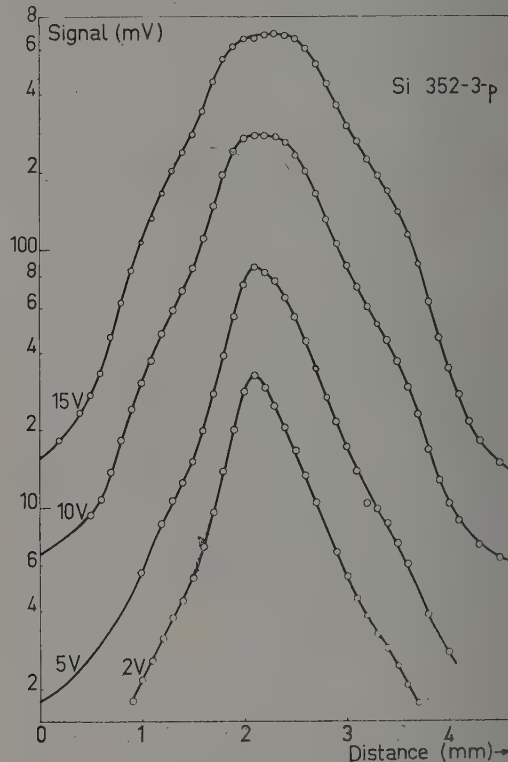


Fig. 6.

III. **Conclusion.** — On vient de voir qu'on retrouve expérimentalement certains résultats que la théorie laissait prévoir quant à la conductivité superficielle et l'effet channel. On a pu ainsi créer ou supprimer à volonté un channel, et modifier une conductivité superficielle dans d'assez grandes limites suivant la durée du traitement oxydant ou réducteur employé. Il est beaucoup plus difficile, à partir des courbes obtenues de tirer des résultats quantitatifs.

Si on désire utiliser ces résultats pour une mesure de longueur de diffusion sur le silicium par la méthode Valdès, la marche à suivre est la suivante (comparer avec réf. [4]) : la surface de l'échantillon doit être soigneusement polie à l'aide d'un abrasif très fin (oxyde de cérium), puis décapée chimiquement à l'aide du traitement déjà indiqué (NO_3H et FH). Après avoir laissé tremper plusieurs heures l'échantillon dans une solution à quelques pour cent de bisulfite de sodium (si type n) ou bichromate de potassium (si type p), on fait la mesure en superposant un fond lumineux

continu. Les mesures sont alors reproductibles, et compatibles avec les mesures de durée de vie obtenues par décroissance de la photoconductivité. Elles ont sur ces dernières le grand avantage d'être insensibles aux pièges et d'être beaucoup plus locales, puisqu'on peut les répéter sur tous les points de la surface.

Annexe I

On cherche la solution de l'équation différentielle de diffusion :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial X^2}+\frac{\partial^2}{\partial Y^2}+\frac{\partial^2}{\partial Z^2}\right) p(X, Y, Z) - [p(X, Y, Z) - p_0] = 0. \quad \text{(A 1)}$$

pour la condition aux limites $Z = 0$:

$$D^2\left(\frac{\partial^2}{\partial X^2}+\frac{\partial^2}{\partial Y^2}\right) p(X, Y, 0) = S[p(X, Y, 0) - p_0] + \frac{\partial}{\partial Z} p(X, Y, 0) - \frac{L_p I_g}{eD_p}\delta(X), \quad \text{(A 2)}$$

où I_g dans le dernier terme représente le courant total d'injection de trous à la position de la zone éclairée $X = 0$ et $z = 0$, et $\delta(X)$ la fonction de Dirac. Nous introduisons une transformation combinée Fourier-Laplace de $p(X, Y, Z) - p_0$:

$$P(\xi,\zeta) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{0} [p(X, Y, Z) - p_0]\, e^{i\xi X+\zeta Z}\, dX\, dZ \quad \text{(A 3)}$$

et une transformation de Fourier de

$$p(X, Y, 0) - p_0 :$$

$$\bar{P}(\xi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty} [p(X, Y, 0) - p_0]\, e^{i\xi X}\, dX. \quad \text{(A 4)}$$

Si alors nous multiplions l'équation A 1) par $\frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{i\xi X+\zeta Z}$ et l'équation A 2) par $\frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{i\xi X}$ et intégrons par rapport à X entre les limites $-\infty$ et $+\infty$ et par rapport à Z entre les limites $-\infty$ et 0, nous obtenons deux équations :

$$(\zeta^2 - \xi^2 - 1)\, P(\xi, \zeta) = -\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\partial P(X, Y, 0)}{\partial Z}\, e^{i\xi X}\, dX + \zeta\,\bar{P}(\xi) \quad \text{(A 5)}$$

et

$$S + D^2\xi^2\,\bar{P}(\xi) = -\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\partial P(X, Y, 0)}{\partial Z}\, e^{i\xi X}\, dX + \frac{L_p I_g}{\sqrt{2\pi}\, eD_p}. \quad \text{(A 6)}$$

Par l'élimination de

$$\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\partial p(X, Y, 0)}{\partial Z}\, e^{i\xi X}\, dX$$

on obtient une équation, qui donne la relation entre $P(\xi, \zeta)$ et $\bar{P}(\xi)$:

$$(\zeta^2 - \xi^2 - 1)\, P(\xi, \zeta) = (S + D^2\xi^2 + \zeta)\,\bar{P}(\xi) - \frac{L_p I_g}{\sqrt{2\pi}\, eD_p}. \quad \text{(A 7)}$$

La transformation $P(\xi, \zeta)$ est régulière et bornée dans le demi-plan $\zeta > 0$. D'où on tire, que la partie droite de l'équation A 7) doit être nulle pour $\zeta = \sqrt{1 + \xi^2}$. Ainsi, nous obtenons l'expression suivante pour la transformation $\bar{P}(\xi)$:

$$\bar{P}(\xi) = \frac{L_p I_g}{\sqrt{2\pi}\, eD_p}\,\frac{1}{S + D^2\xi^2 + \sqrt{1 + \xi^2}}. \quad \text{(A 8)}$$

La transformation de Fourier inverse de $\bar{P}(\xi)$ donne la formule (22) pour la distribution de la concentration des trous en excès sur la surface du semiconducteur.

Annexe II

Pour démontrer l'équivalence de la formule (22), si $D = 0$, avec l'expression de Roosbroeck (*loc. cit.* : formule 37) :

$$p(X, Y, 0) - p_0 \approx \int_0^\infty \frac{K_1(\sqrt{X^2 + \zeta^2})}{\sqrt{X^2 + \zeta^2}}\, e^{-S\zeta}\,\zeta\, d\zeta \quad \text{(A 9)}$$

on fait la transformation de Fourier de celle-ci :

$$\bar{P}(\xi) \approx \int_0^\infty e^{-S\zeta}\,\zeta\, d\zeta\int_0^\infty \frac{K_1(\sqrt{X^2 + \zeta^2})}{\sqrt{X^2 + \zeta^2}}\cos(\xi X)\, dX = \sqrt{\frac{\pi}{2}}\int_0^\infty e^{-S\zeta}\,\zeta\, d\zeta\int_0^\infty \frac{K_1(\sqrt{X^2 + \zeta^2})}{\sqrt{X^2 + \zeta^2}}\, J_{-1/2}(\xi X)\sqrt{X}\, dX. \quad \text{(A 10)}$$

La valeur de la deuxième intégrale dans (A 10) est d'après la formule de Sonine (Watson [18], p. 416) égale à :

$$\left(\frac{\sqrt{1 + \xi^2}}{\xi\zeta}\right)^{1/2} K_{1/2}\zeta(\sqrt{1 + \xi^2}) = \sqrt{\frac{\pi}{2}}\,\xi^{-1/2}\,\zeta^{-1}\, e^{-\zeta\sqrt{1+\xi^2}}. \quad \text{(A 11)}$$

Introduisant (A 11) dans (A 10) on obtient par intégration l'expression

$$\bar{P}(\xi) \approx \frac{\pi}{2}\,\frac{1}{S + \sqrt{1 + \xi^2}}, \quad \text{(A 12)}$$

qui est équivalente, pour $D = 0$, à (A 8).

Manuscrit reçu le 5 août 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] GOUCHER (F. S.), *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 475.
[2] VALDES (L. B.), *Proc. Inst. Rad. Engrs.*, 1952, **40**, 1420.
[3] ROOSBROECK (W.), *J. Appl. Phys.*, 1955, **26**, 380.
[4] HOGARTH (C. A.), *Proc. Phys. Soc.* B, 1956, **69**, 791.
[5] CUTLER (M.) et BATH H. B.), *J. Appl. Phys.*, 1954, **25**, 1440.
[6] CUTLER (M.) et BATH (H. B.), *Proc. Inst. Rad. Engrs*, 1957, **45**, 39.
[7 McWHORTER (A. L.) et KINGSTON (R. H.), *Proc. Inst. Rad. Engrs*, 1954, **42**, 1376.
[8] AIGRAIN (P.), *Ann. Phys.*, 1952, **7**, 140.
[9] MOORE (A. R.) et WEBSTER (W. M.), *Proc. Inst. Rad. Engrs*, 1955, **43**, 426.
[10] GARRETT (C. G. B.) et BRATTAIN (W. H.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 376.
[11] JOHNSON (E. O.), *R. C. A. Rev.*, 1957, **18**, 556.
[12] SCHRIEFFER (J. R.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 641.
[13] SCHRIEFFER (J. R.), Semiconductor Surface Physics, University of Pennsylvania Press, 1956, p. 55.
[14] JOHNSON (E. O.), *J. Appl. Phys.*, 1957, **28**, 1349.
[15] STATZ (H.), DE MARS (G. A.), DAVIS (L. Jr.) et ADAMS (A. Jr.), Semiconductor Surface Physics, University of Pennsylvania Press 1956, p. 139.
[16] MOORE (A. R.) et NELSON (H.), Transistors I, R. C. A. Laboratories Princeton, 1956, p. 136.
[17] ARTHUR (J. B.), BARDSLEY W.), GIBSON (A. F.) et HOGARTH (C. A.), *Proc. Phys. Soc.* B, 1955, **68**, 121.
[18] WATSON (G. N.), A Treatise on the Theory of Bessel Functions, Second Edition, Cambridge University Press 1948.

ERRATUM

Certains des auteurs de l'article sur le « **Calcul des valeurs propres de l'opérateur de collision élastique d'un gaz de Lorentz** », *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 624, par A. Arsac, L. Basquin, J. F. Denisse, J. L. Delcroix et J. Salmon, ne travaillent pas au Commissariat à l'Énergie Atomique, mais :

M. DELCROIX, au Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure.

MM. ARSAC et DENISSE, à l'Observatoire de Paris, Section Astrophysique.

SUR LA DISCRIMINATION ALPHA-PROTON A L'AIDE D'ÉMULSIONS PHOTOGRAPHIQUES D_1 ET K_0 (1)

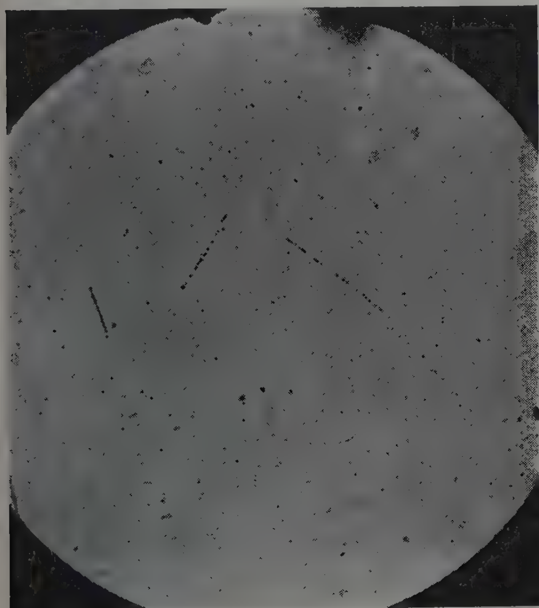
Par MARIE ADER, avec la collaboration de MARIE-PAULE CABANNES,
Laboratoire de Physique Atomique et Moléculaire, Collège de France.

Résumé. — Des méthodes de renforcement des trajectoires de particules α et de protons dans les émulsions Ilford D_1 et K_0 sont décrites. Ces méthodes permettent une discrimination satisfaisante des deux sortes de particules et aussi un comptage aisé de grains et de lacunes dans les traces de protons et de particules α.

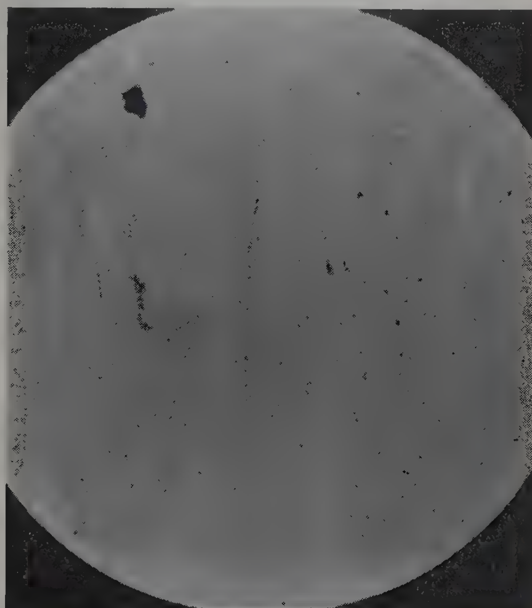
Abstract. — Methods are given for intensifying the trajectories of α particles and protons in Ilford D_1 and K_0 emulsions. These methods enable us to distinguish satisfactorily one kind of particle from the other, and to count easily grains and gaps in tracks of protons and α particles.

Si l'on emploie la méthode des émulsions photographiques, la discrimination alpha-proton pose quelques problèmes délicats. Les plaques G_5, C_2 et même E_1, dans les cas d'expositions longues pour recherches de phénomènes rares, laissent des doutes sur la détermination de ces deux sortes de particules.

On sait que les traces de particules α, s'atténuant avec le temps, prennent l'aspect de traces de protons sous formes de grains séparés et finissent même par s'effacer. Dans un flux intense, le bruit de



A



B

Groupe 1. — Émulsions K_0, 100 μ, surdéveloppement simultané :

A) La plaque est exposée à un générateur de neutrons de 14 MeV. On y aperçoit : une trace de particule α, deux traces de protons en fin de parcours, avec une bonne discrimination.

B) La plaque est exposée à une source de polonium recouverte d'une feuille de 10 μ de platine, destinée à arrêter tous les rayons α émis par le polonium.

Les deux traces du cliché, presque parallèles, représentent les fins de parcours de deux particules de parcours anormalement long émises par la source.

La comparaison des deux clichés A et B permet de dire que ces dernières particules sont moins ionisantes que des rayons α.

(1) La maison Ilford ayant arrêté la fabrication des émulsions D_1, un stock datant de 1953-1954 a été utilisé pour ce travail.

fond, dû aux rayons β et γ, rend difficile la lecture des plaques.

Les émulsions D_1 et K_0 ne sont pas du tout sensibles aux rayons β et γ, peu sensibles aux rayons α et pas, ou très peu, sensibles aux protons.

Cependant un traitement de ces émulsions permet d'y faire apparaître des traces de particules α et des protons de plusieurs MeV avec une bonne discrimination.

Variation de la sensibilité des plaques D_1 et K_0 avec le développement. — Lorsque l'épaisseur des émulsions ne dépasse pas 100 μ, le développement peut être fait à la température du laboratoire, à l'aide d'un révélateur à l'azol et achevé par les procédés courants.

1° *Modification de la durée du développement.* — En utilisant l'azol à 1 % et en modifiant le temps d'immersion des plaques dans ce révélateur, on obtient les résultats réunis dans le tableau ci-dessous. Les observations sont faites sur des traces horizontales de plaques D_1 et K_0 50 μ, exposées simultanément à un générateur de neutrons de 14 MeV et développées simultanément.

Durée d'immersion dans le révélateur	Plaques D_1	Plaques K_0
15 mn	Très peu de voile. — α : très nets, les grains peuvent être comptés, on peut mesurer les lacunes. — *Protons :* jusqu'à 200 μ environ, pâles, grains très séparés jusqu'à l'extrémité, lacunes très mesurables.	Très peu de voile. — α : nets, les grains peuvent être comptés ; lacunes nettes, très facilement mesurables. — *Protons :* maximum 150 μ, grains très séparés, lacunes très apparentes.
30 mn	Voile plus net. α : plus noirs, grains jointifs difficilement dénombrables. — *Protons :* jusqu'à 350 μ environ, grains très séparés et plus noirs. Très bonne discrimination α, p.	Un peu de voile. Une coloration jaune apparaît. α : grains jointifs. — *Protons :* maximum 250 μ, comptage de grains et de lacunes aisé. Très bonne discrimination α, p.
45 mn	Voile peu gênant. α : épais, grains difficiles à compter. — *Protons :* jusqu'à 550 μ environ. Comptage de grains aisé, lacunes nettes ; très bonne discrimination α, p.	Émulsion plus colorée, fond avec fin pointillé. — α : très nets, grains très jointifs non dénombrables ; trace en dents de scie. — *Protons :* grains séparés sauf à l'extrémité où 3 ou 4 grains sont groupés, quelquefois un groupe de grains mesure 6 à 7 μ et a la densité d'α ; très bonne discrimination α, p.
60 mn	Voile plus prononcé mais ne gêne pas les mesures. α : nets, grains jointifs, lacunes peu ou pas observables. — *Protons :* jusqu'à 800 μ environ très nets, comptage de grains aisé, lacunes nettes. Excellente discrimination α, p.	Coloration plus intense, fond plus trouble mais ne gêne pas l'observation des traces. α : très épais, grains très jointifs, lacunes visibles. — *Protons :* grains séparés, lacunes nettes. Excellente discrimination α, p, les plaplaques K_0 moins sensibles aux protons que les plaques D_1.

2° *Modification de la concentration du révélateur.* — En utilisant l'azol à 5 cm³ pour 400 cm³ d'eau distillée il apparaît que :

— les plaques K_0 se développent moins bien que les D_1, elles sont colorées avec un fond « brouillé », tandis que les D_1 sont limpides ;

— les plaques D_1 plus sensibles que les K_0, enregistrent les protons jusqu'au delà de 9 MeV.

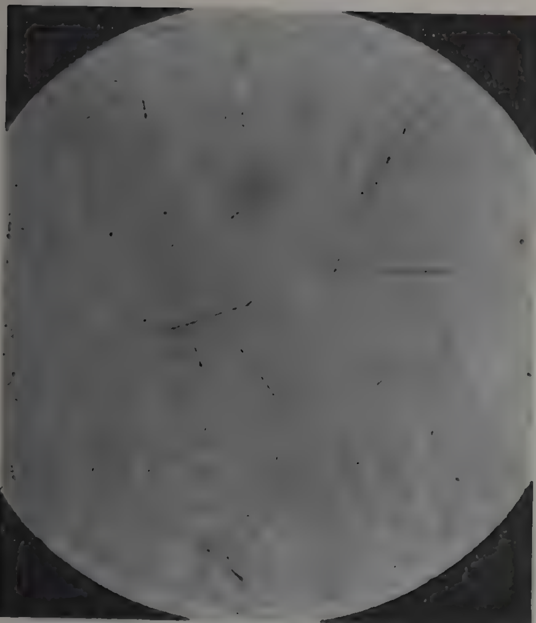
Dans les deux sortes de plaques on a une très bonne discrimination alpha-proton.

Augmentation de la sensibilité des plaques D_1 et K_0 par l'imprégnation de bore ([2]). — Les plaques D_1 et K_0 100 μ chargées au bore, exposées au rayonnement d'un générateur de neutrons de 14 MeV enregistrent des protons de 14 MeV. Les plaques K_0 ne sont ni colorées, ni troubles. Les traces de protons sont très renforcées, beaucoup plus nombreuses, le nombre de grains plus grand. La discrimination alpha-proton est moins bonne, l'origine et l'extrémité des traces sont moins bien définies.

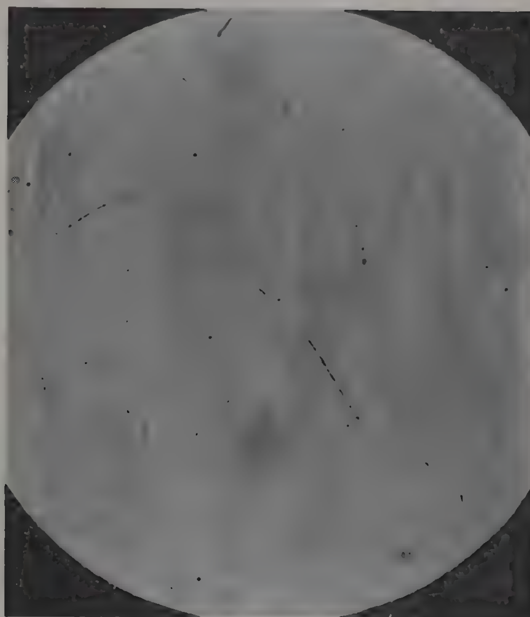
Remarque. — L'imprégnation des plaques au bore après l'irradiation n'entraîne aucun des résultats ci-dessus. Il semblerait que l'effet sensibilisateur du bore se produise au moment de la formation de l'image.

Conclusion. — Les émulsions D_1 et K_0 chargées au bore sont sensibles à des protons d'au moins 14 MeV.

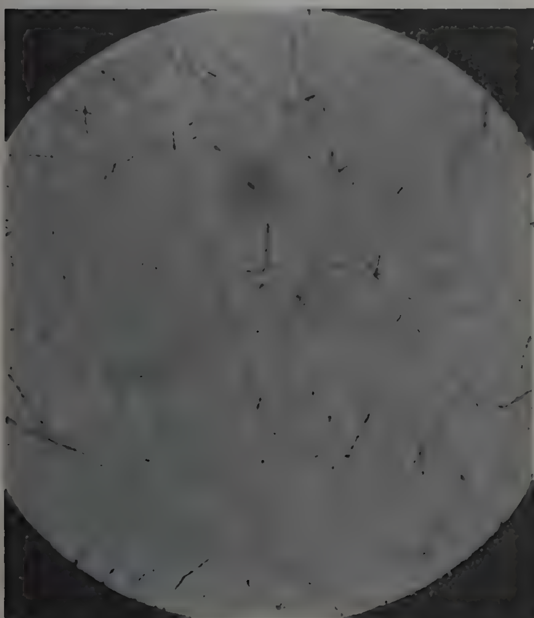
([2]) L'étude de l'action du bore sur les émulsions Ilford est en cours.



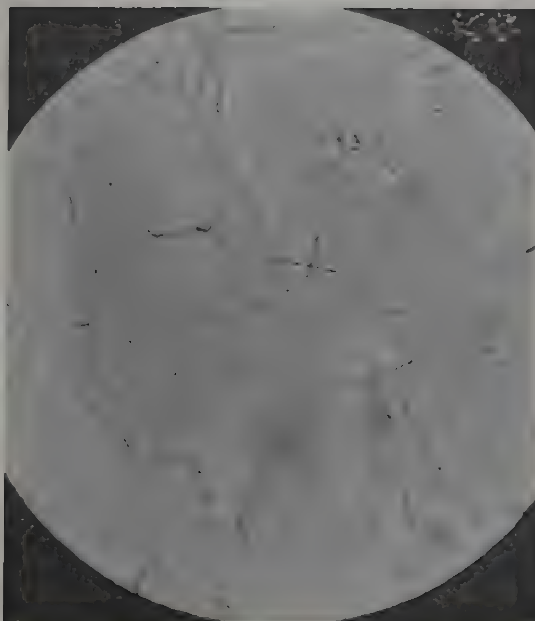
C



D



E



F

Groupes 2 *et* 3. — Émulsions D_1 : (C et E) et K_0 : (D et F) 100 μ exposées simultanément à un générateur de neutrons de 14 MeV et simultanément surdéveloppées.

Le groupe 3 a été irradié pendant un temps quatre fois plus long que le groupe 2.

Ces 4 clichés montrent une bonne discrimination alpha-protons.

Dans chaque groupe on aperçoit :

1° Le fin pointillé formant brouillard des plaques K_0 (D et F) surdéveloppées.

2° Un nombre de traces nettement supérieur enregistré par les émulsions D_1 (C et E), leur sensibilité aux protons notamment apparaît ici plus grande que celle des émulsions K_0.

— Les émulsions D_1 et K_0 surdéveloppées enregistrent des protons de plusieurs MeV. Les plaques K_0 sont moins sensibles aux protons que les plaques D_1.

— Elles fournissent une discrimination α, p satisfaisante.

— Elles peuvent être utilisées à une étude de densité de grains et de mesures de lacunes des particules α et de protons. La discrimination α, p a permis :

1° de constater que les particules de parcours anormalement long émises par certains radioéléments sont moins ionisantes que des particules α [3] ;

2° de voir que le flux d'un générateur de neutrons de 14 MeV produit dans l'intérieur de l'émulsion des traces de rayons α isolées, dont le spectre présenterait plusieurs pics et s'étendrait au delà de 17 MeV [4].

Manuscrit reçu le 22 août 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[3] *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 615.

[4] *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 913.

ÉTUDE PAR ABSORPTION HERTZIENNE DE L'EAU ADSORBÉE SUR UN GEL DE SILICE

Par M. KAN-ICHI KAMIYOSHI (*), et M. JEAN RIPOCHE (**),
Tohoku University, Sendaï, Japon.
Faculté des Sciences de Rennes.

Résumé. — L'absorption hertzienne de l'eau adsorbée sur un gel de silice a été étudiée ici, en fonction de sa teneur en eau de 0 % à 40 %, et en fonction de, la température, de 4 °K à 300 °K, pour les fréquences 0,09, 1, 10 et 100 kHz. La détermination de l'énergie d'activation

$$U \text{ tiré de } (fc = A \exp - U/kT)$$

conduit à la représentation de cette valeur en fonction de la teneur en eau, pour les deux régions d'absorption II et III déjà connues : Un minimum de U_{II} existe pour un faible pourcentage d'eau.

Une troisième région d'absorption (I) semble exister à 79 °K pour 1 kHz avec $U = 0,23$ eV. Cette bande est très plate et faible ; lorsqu'on réhumidifie elle disparaît peu à peu.

Abstract. — The dielectric absorption of the adsorbed water on silica-gel is studied here as a function of water content from 0% to 40 % and of temperature from 4 °K to 300 °K at the frequencies 0,09, 1, 10, 100 kHz.

The plot of the activation energy U from ($fc = A \exp - U/kT$) against the amount of water shows the two well known absorption regions (II and III) : There is a minimum of U_{II} for a small amount of water.

A third absorption region (I) seems to exist at 79 °K for 1 kHz with $U = 0,23$ eV. This band is very flat and weak ; when the silica-gel is rehumidified this band disappears little by little.

1. **Introduction.** — Les travaux de M. et R. Freymann [1] et de M. Th. Rolland et Bernard [2] ont permis de mettre en évidence, pour un gel de silice, deux régions d'absorption diélectrique en ondes kilométriques, l'une entre 160 °K et 170 °K à 1 kHz (région II) et une autre située entre 220 °K et 230 °K à 1 kHz (région III), (ces températures variant avec la teneur en eau) lorsqu'on étudie les propriétés diélectriques en fonction de la température. Tout à fait indépendamment des chercheurs précédents, nous avions observé [3] une bande d'absorption (région III) à la température ambiante pour un gel de silice ; nous avions déterminé U en fonction de la température et de la teneur en eau. La bande II a été observée également par J. Le Bot [4] et S. Le Montagner [5] en ondes centimétriques. Waldman [6] a déterminé l'énergie d'activation U en fonction de la teneur en eau (régions II et III). On observe une seule région d'absorption pour les substances suivantes : ammoniac, butane-n, chlorure d'éthyle [6] et alcool méthylique, éther diéthylique, benzène [7].

Rappelons enfin le travail récent de Kämpf et Kohlshütter [8] relatif à la région III (vers la température ordinaire pour l'eau fixé sur gel de silice).

Heukelon et Van Reijen [7] pensent que le phénomène de la région III est dû à l'hétérogénéité du diélectrique.

Le but de ce travail a été d'établir de façon plus précise les courbes reliant les énergies d'activation U_{II} ou U_{III} à la teneur en eau ; chemin faisant, nous avons mis en évidence une nouvelle région d'absorption (région I) à des températures inférieures à 100 °K.

2. **Technique d'étude.** — L'ensemble de mesures de la constante diélectrique comprend un Pont de Schering General Radio 716 C, un oscillateur General Radio 1302 A et un détecteur General Radio Unit Null Detector 1212 BRFA. Nous tenons compte des corrections d'angle de perte établies par Meinnel [9] lorsque les pertes sont élevées. Le condensateur utilisé est cylindrique ($h = 3$ cm, $R = 2,2$ cm, $r = 2,0$ cm) et sa capacité à vide est $C_0 = 18,6$ pF. (Cette valeur a été déterminée avec du benzène.) Il contient environ 1,51 g de gel de silice sec. Avec une pompe à diffusion, il est possible de faire le vide dans l'enceinte du condensateur jusqu'à 10^{-6} mm Hg.

Une résistance de platine de 100 ohms à 0 °C, placée dans une petite boîte de laiton fixée sur le condensateur de mesure, permet de mesurer la température avec une précision de 1 °C. Les mesures sont faites seulement au réchauffement, à une vitesse de 40 °C/h environ. Le domaine de température est compris entre 4 °K et 300 °K.

Le gel de silice étudié est l' « actigel » Prolabo. L'actigel généralement utilisé est tamisé et contient des grains compris entre les tamis de 121 et 676 mailles/cm².

Afin de déterminer la teneur en eau de l'échantillon étudié, nous considérons conventionnellement comme ayant un pourcentage d'eau (g d'eau/1 g

(*) Travail effectué au Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Rennes.
(**) Diplôme d'Études Supérieures, Rennes, 1958.

d'actigel × 100) zéro, l'actigel séché 6 h à 110 °C à l'étuve sous la pression atmosphérique. Pour obtenir une valeur moyenne, le pourcentage est déterminé d'une part avant la mesure des propriétés diélectriques à partir de l'échantillon préparé pour remplir le condensateur et d'autre part, après la mesure avec le produit utilisé.

Les mesures des propriétés diélectriques à des pourcentages compris entre 0 % et 3 % sont faites sous atmosphère d'azote. Quant à celles effectuées au-dessus de 4 %, elles sont faites dans l'air, à la pression atmosphérique.

3. **Résultats expérimentaux.** — A titre d'exemple la figure 1 donne les courbes obtenues pour ε''

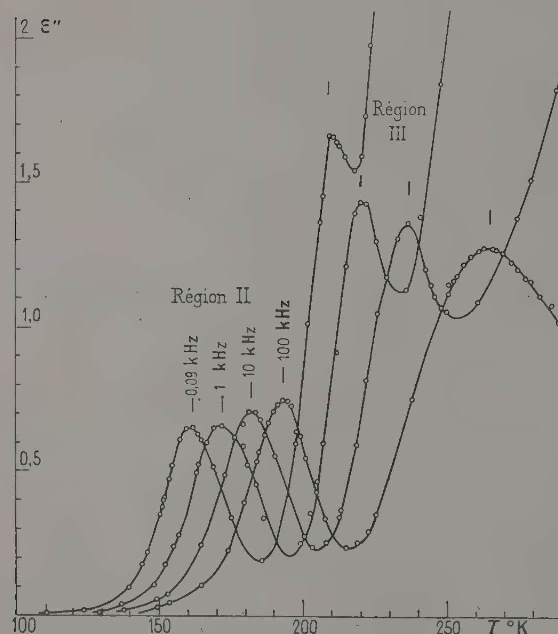


Fig. 1. — ε'' fonction de la température T aux fréquences 0,09, 1, 10 et 200 kHz.

fonction de la température (à partir de 100 °K) aux fréquences 0,09, 1, 10 et 100 kHz. — L'échantillon utilisé dans ce cas contenait 22,3 % d'eau et les températures (T °K) des maxima sont les suivantes : 162, 172, 182, 193 °K (région II) ; 209, 220, 237, 265 °K (région III). Avec ces résultats nous représentons log f_c — $1/T$ et en déduisons l'énergie d'activation U par $f_c = A\ e^{-U/kT}$ (ici $U_{\text{II}} = 0{,}60$ eV, $U_{\text{III}} = 0{,}88$ eV).

Région II.

La courbe de la figure 2 représente U en fonction du pourcentage d'eau (déterminé comme nous l'avons indiqué plus haut, c'est-à-dire en ne chauffant pas au-dessus de 110 °C). Sur cette figure on peut voir un minimum vers 3 % d'eau, puis un palier de 6 à 16 % avec $U = 0{,}51 - 0{,}53$ eV suivi d'une lente augmentation jusqu'à 0,66 eV

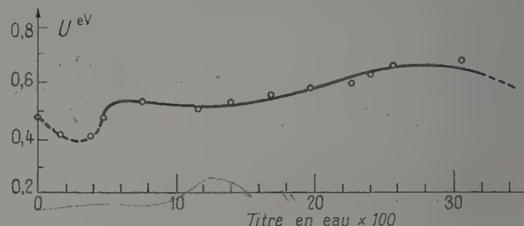


Fig. 2. — Énergie d'activation U en fonction de la teneur en eau (Région II).

pour 28 % ; ensuite U décroît mais il devient difficile d'observer les maxima pour des pourcentages d'eau supérieurs à 34 %, du fait de l'augmentation de la conductivité.

Le point correspondant à 0 % de la figure 2 a été obtenu par chauffage 6 h à 110 °C et, après introduction de l'actigel dans le condensateur, par pompage à 10^{-5} mm Hg durant 6 h : Les bandes d'absorption ne disparaissent pas ; ε'' (max.) = $5{,}5 . 10^{-2}$ à 90 Hz ; — Si le pompage à 10^{-5} mm Hg est encore continué pendant 36 h les bandes diminuent ; $\varepsilon'' = 3 . 10^{-2}$; mais, dans ce cas, le point correspondant à l'énergie d'activation n'est pas noté sur la figure, car il est impossible de fixer avec certitude les températures des maxima. Il est d'ailleurs difficile de connaître la valeur exacte du

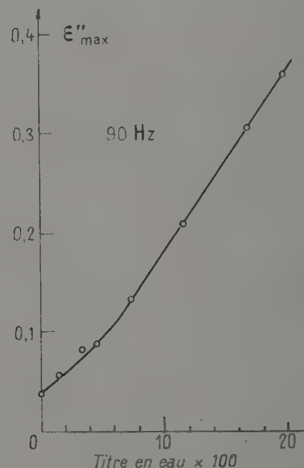


Fig. 3. — $\varepsilon''_{\max}$ en fonction de la teneur en eau (Région II).

pourcentage d'eau lorsque l'actigel est étudié dans ces deux derniers cas.

La figure 3 représente ε'' (max.) divisé par le poids de substance dans le condensateur, à 90 Hz,

en fonction du pourcentage d'eau : ε″ (max.) décroît de façon monotone et continue avec la teneur en eau, tout particulièrement entre 8 % et 0 %, domaine dans lequel se situe le minimum de U (*fig.* 2).

La figure 4 représente U en fonction de ε″ (max.) par gramme d'actigel : Le minimum existe aussi. Sur cette même figure les résultats obtenus pour

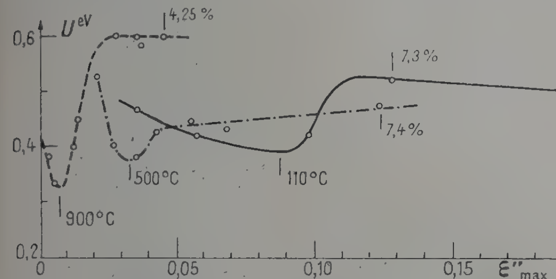


Fig. 4. — Énergie d'activation U pour les échantillons d'actigel traités à 110 °C, 500 °C et 900 °C fonction de ε″ maximum à 90 Hz par unité de poids dans le condensateur.

des échantillons traités 3 h à 500 °C et 3 h à 900 °C et ensuite réhumidifiés, montrent aussi l'existence d'un minimum, mais à ces positions de U minimum correspondent des valeurs de ε″ (max.) beaucoup plus faibles. Chaque échantillon d'actigel a subi les traitements suivants : séchage 3 h à 500 °C ou 900 °C, réhumidification, nouveau séchage 3 h à 130 °C et pompage à 10^{-5} mm Hg pendant 1 h. — Les mesures diélectriques sont faites à partir de ces échantillons en réhumidifiant peu à peu dans le condensateur. Dans les cas du traitement à 500 ° et 900 °C l'actigel ne se réhumidifie que jusqu'à 19 % et 4,3 % respectivement. L'actigel ordinaire atteint 24 % dans les mêmes conditions.

Région III.

Il y a deux caractères pour la région III. — Les bandes de cette région (*fig.* 1) sont beaucoup plus

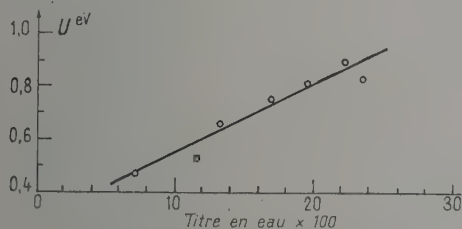


Fig. 5. — Énergie d'activation U fonction de la teneur en eau (Région III).
U est déterminé entre 90 Hz et 1 kHz.

larges pour les fréquences élevées, c'est-à-dire les températures élevées. La courbe log f_0 — $1/T$ construite à partir des températures maxima d'absorption est très incurvée et il est impossible de déterminer U qui est susceptible de changer graduellement avec la température. La figure 5 représente U déterminé entre 90 Hz et 1 kHz, en fonction du pourcentage d'eau, dans le domaine possible d'étude, soit 7 % à 24 %. En effet, au-dessous de 7 % les maxima sont déplacés vers les trop hautes températures et les présentes expériences ne permettent pas de les observer. Au-dessus de 24 % on n'observe plus les maxima. L'énergie d'activation U diminue avec la teneur en eau.

Région I.

La figure 6 représente ε″ à partir de la température de l'hélium liquide, de l'actigel traité 3 h à 500 °C, réhumidifié et séché encore à 130 °C. Il

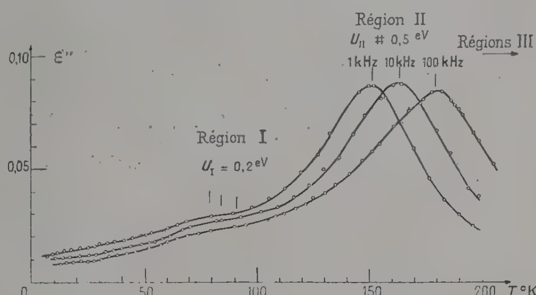


Fig. 6.

semble qu'il existe une nouvelle région d'anomalie vers 80 °K (région I) à 1, 10 et 100 kHz. Pour déterminer le maximum de ε″ nous avons décomposé en deux bandes (région I et II) (*fig.* 7). La

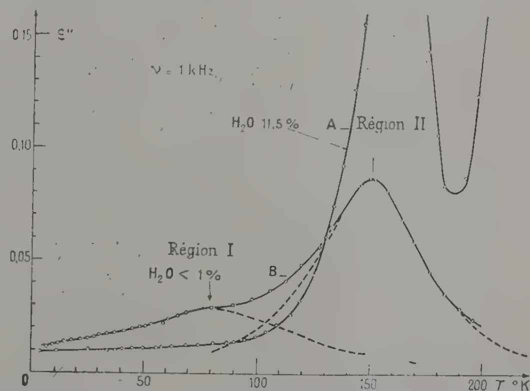


Fig. 7. — ε″ de l'actigel traité à 500 °C fonction de la température à 1 kHz.
A : rehumidifié jusqu'à 11,5 %.
B : Reproduction de la figure no 6 à 1 kHz.

première bande est très plate. L'énergie d'activation calculée est $U = 0{,}23$ eV et log $A = 17{,}0$. Cette région d'absorption diminue quand la teneur

en eau augmente. A titre d'exemple, sur la figure 7, se trouve la courbe obtenue pour le même échantillon réhumidifié jusqu'à 11,5 % : le maximum a disparu.

4. **Discussion.** — Quelques mesures nous ont permis de conclure que la finesse des grains de gel de silice n'influe pas sur les propriétés diélectriques. Des expériences faites à des vitesses de réchauffement plus lentes (20 °C/h) ne permettent pas de déceler une différence notable.

Le problème de la détermination de la teneur en eau adsorbée sur le gel de silice est difficile. Nous avons employé conventionnellement le séchage 6 h à 110 °C. Mais après chauffage à cette température, le gel de silice contient encore de l'eau ; s'il est traité à des températures supérieures, son poids diminue encore. Ainsi, pour un échantillon traité 3 h à 900 °C une perte de poids d'environ 10 %, est observée. Mais après ce traitement, l'actigel réadsorbe seulement 4,3 % d'eau.

Avec les données de Waldman [6] on peut dessiner pour la région II la courbe reliant U au pourcentage d'eau. Elle est semblable à celle obtenue ici, mais les points sont dispersés surtout entre 0 % et 6 %, d'autre part, les valeurs de U sont de beaucoup supérieures : $U = 0{,}65$ eV pour 3 %, $U = 0{,}98$ eV de 10 % à 18 %.

Manuscrit reçu le 2 septembre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Freymann (M. et R.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 165 ; 1956, **17**, 326.
[2] Rolland (M. Th.) et Bernard (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 1098.
[3] Kamiyoshi (K. I.) et Odake (T.), *Sc. Rep. Res. Instr.*, Tohoku Univ., 1953, **5**, 271.
[4] Le Bot (J.), *Thèse*, Paris, 1955.
[5] Le Bot (J.) et Le Montagner (S.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 862.
[6] Waldman (M. H.), *Thèse*, Rennes, 1955 ; *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 426.
[7] Heukelon (W.) et Van Reijen (L. L.), *J. Chim. Phys.*, 1954, **51**, 632.
[8] Kampf ou Kohlschütter, *Z. anorg. allg. Chem.*, 1958, **294**, 10.
[9] Meinnel (J.), *Thèse*, Paris, 1958.

SCHÉMA DE NIVEAUX DE $^{187}_{75}Re$

Par MICHEL VERGNES,
Laboratoire de Physique Nucléaire du Collège de France à Orsay.

Résumé. — La désintégration : $^{187}_{74}W \rightarrow ^{187}_{75}Re$ a été étudiée par spectrométrie β, spectrométrie γ, et par coïncidences β-γ et γ-γ, lentes et rapides.

Des transitions de : 72, 134, 206(?), 480, 552, 630, 686, 775, 866 keV, ont été mises en évidence, correspondant à des niveaux excités de : 134, 206, 630, 686, 775, 866 (ou 1 000) keV.

Le niveau de 206 keV, de période : $T\,1/2 = 5.10^{-7}$ sec, se désexcite au niveau de 134 keV par une transition de 72 keV que nous avons identifiée comme étant de nature E1. (Facteur d'inhibition : $F = 3{,}5\ (\pm 1{,}5).10^{6}$.)

Des spins et parités ont été assignés à la plupart des niveaux. Un schéma de niveaux est proposé.

Abstract. — The disintegration : $^{187}_{74}W \rightarrow ^{187}_{75}Re$ has been studied by β spectrometry, γ spectrometry, β-γ and γ-γ coïncidences, slow and fast.

Transitions of : 72, 134, 206(?), 480, 552, 630, 686, 775, 866 keV have been found, corresponding to excited levels of : 134, 206, 630, 686, 775, 866 (or 1 000) keV.

The 206 keV level, of period : $T\,1/2 = 5.10^{-7}$ sec, is de-excited to the 134 keV level by a 72 keV transition that we have identified as being E1 (Hindrance factor : $F = 3{,}5\ (\pm 1{,}5).10^{6}$.)

Spins and parities have been assigned for most of the levels. We propose a level scheme based on the whole experimental results.

Introduction. — Les niveaux excités de $^{187}_{75}Re$ peuvent être atteints : soit par désintégration β^- de $^{187}_{74}W$ (de période $\sim$ 24 heures) soit par excitation coulombienne du niveau fondamental.

La désintégration $^{187}_{74}W \rightarrow ^{187}_{75}Re$ a fait l'objet d'un grand nombre d'études ([1] à [7]). Des photons de 72 — 134 — 480 — 550 — 620 — 686 — 775 — 866 keV ont été signalés par la majorité des auteurs. D'autres [8], [9], ont pu mesurer, par surcroît, les électrons de conversion de photons moins intenses, de : 206, 224, 241, 249, 510 keV, et séparer la raie de 620 keV en un doublet : 619 + 626 keV. Un auteur [8] signale des photons de 106 et 114 keV.

Toutes les décompositions du spectre β^- conduisent au même résultat : il existe deux transitions β^-. La première, d'énergie maximum 1,33 MeV ($\Delta I = 2$, changement de parité), aboutit au niveau fondamental et son intensité est 20 % de celle du spectre total. La seconde, d'énergie maximum 0,63 MeV ($\Delta I = 0{,}1$, changement de parité) aboutit au niveau de 686 keV et son intensité est 70 % de celle du spectre total. Dans une étude [9], la décomposition fait apparaître une troisième transition β^- d'énergie maximum $\sim$ 0,32 MeV dont l'intensité est environ 10 % de celle du spectre total. Cette transition est d'ailleurs nécessaire pour peupler les niveaux les plus énergiques de $^{187}_{75}Re$.

Le spin du niveau fondamental de $^{187}_{75}Re$ a été mesuré [10] et trouvé égal à 5/2, comme celui de $^{185}_{75}Re$.

Par excitation coulombienne [11] on obtient les deux premiers niveaux de rotation du niveau fondamental à 135 keV (7/2 +) et 310 keV (9/2 +).

Une période de 5.10^{-7} sec, mesurée par différents auteurs, a été ensuite assignée au niveau de 206 keV.

Une expérience de corrélation angulaire entre les

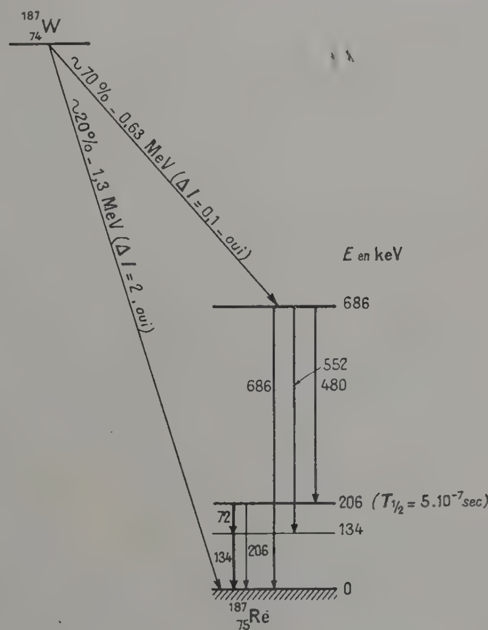


FIG. 1.

photons de 72 et 134 keV a été réalisée [12]. Nous y reviendrons dans la discussion de nos résultats.

Le tableau I résume l'ensemble des mesures

TABLEAU I

Énergie	αK	αL	K/L	Nature	I_γ	Divers
72	?	?	?	E1, E2		
134	2,5 — < 3,2	?	5 ± 0,5	M1 (+ E2)	45	L1/L3 ~ 60 γE/γM de 2,6 à 13 %
206	?	?	4,5 ± 0,5	M1 + E2	$< \frac{I_\gamma\,136}{30}$	
480	?	?	4 ± 1	E2	100	
552	?	?	?	E1	40	
619	?	?	4 ± 1	E2	30	
627					15	
686	?	?	5 ± 1	E1, E2	185	I_γ (686) = 28,8 % des désintégrations [13]
775					20	
866					12	

effectuées sur les photons les plus intenses de $^{187}_{75}$Re. La figure 1 montre la partie du schéma de niveaux pour laquelle un bon accord semble exister.

Les I_γ sont exprimés en unités arbitraires [9].

Il ressort du tableau que la nature des rayonnements électromagnétiques est mal connue, ainsi que les spins et parités de la plupart des niveaux.

Nous avons donc repris l'étude de la désintégration $^{187}_{74}$W → $^{187}_{75}$Re.

Préparation des sources. — Les sources destinées à la spectrométrie γ ont été préparées par irradiation de tungstène métallique en poudre, à la pile P1 de Châtillon.

Les sources destinées à la spectrométrie β^- ont été préparées par dépôt cathodique de tungstène, sur des feuilles d'aluminium de 0,5 micron d'épaisseur. Ces feuilles ont ensuite été irradiées pendant 8 jours à la pile P2 de Saclay.

Spectre γ. — Le spectre γ de $^{187}_{74}$W — étudié à l'aide d'un cristal d'INa(Tl) de 1 × 1 inch — est donné figure 2. Il est composé de photons de 61 + 72 keV (~ 175) — 134 keV (~ 35) — 480 keV (~ 100) — 550 keV (20 à 35) — 620 keV (20 à 35) — 690 keV (~ 100) — 770 keV (~ 10) — 870 keV (0,75 à 1). Les nombres entre parenthèses représentent l'intensité I_γ en unités arbitraires, compte tenu des différences d'efficacité de l'iodure de sodium, des rapports : pic photoélectrique/ spectre total, et de l'échappement pour les photons les moins énergiques.

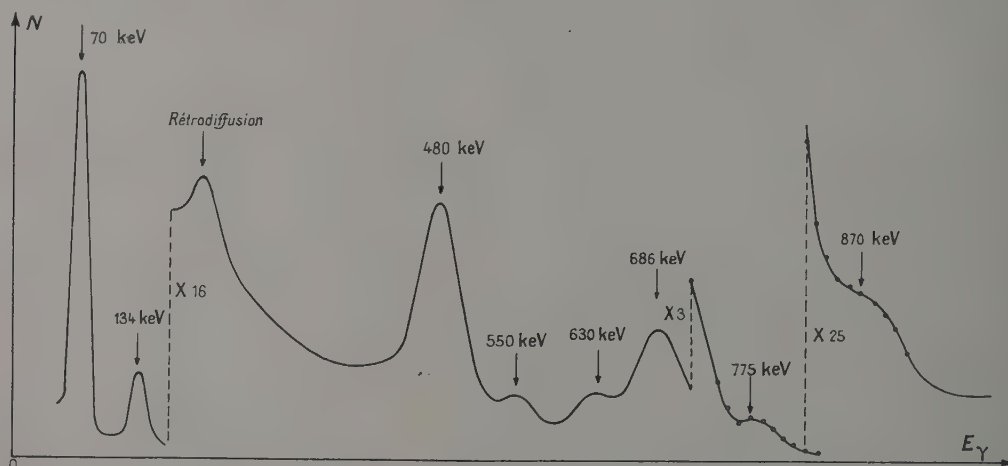


Fig. 2. — Spectre γ.

La figure 2 *bis* montre le pic : 61 + 72 keV. Le photon de 72 keV apparaît comme une bosse sur le flanc de la raie X_K.

Coïncidences γ-γ. — Elles ont été effectuées au moyen de l'installation de coïncidence « rapide-lente » déjà décrite [14]. Les photomultiplicateurs E. M. I. 6262 ont été remplacés par des

R. C. A. 6810 A, lesquels permettent une meilleure résolution en énergie, pour des résultats équivalents du point de vue coïncidence rapide.

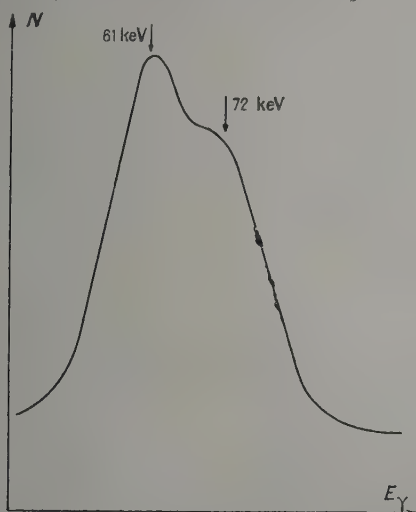


FIG. 2 *bis*. — Pic (61 + 72) keV.

1° Le pic correspondant au photon de 134 keV étant sélectionné sur la voie A, le spectre en coïncidence (voie B) est composé des photons de 480 et 550 keV. Si on ajoute des retards sur la voie B, on voit que le photon de 550 keV est en coïncidence rapide avec le photon de 134 keV, tandis que que le photon de 480 keV n'est en coïncidence avec le photon de 134 keV que par l'intermédiaire d'un niveau de période :

$$T1/2 = 5(\pm 1).10^{-7} \text{ sec.}$$

2° En sélectionnant sur la voie A le pic correspondant au photon de 480 keV et en introduisant sur cette voie un retard de 10^{-6} sec, on trouve en coïncidence un spectre composé d'un pic (61 + 72) keV, du photon de 134 keV et d'une faible bosse aux environs de 205 keV. Comme nous prenons dans la bande du sélecteur A une partie du fond Compton des photons d'énergie supérieure à 480 keV, il peut s'agir, pour cette dernière raie, d'un pic de rétrodiffusion. De toute façon, on a

$$\frac{I_\gamma(206)}{I_\gamma(134)} \leqslant 10 \%$$

On a de même :

$$\frac{I_\gamma(61 + 72)}{I_\gamma(134)} = 5 \pm 1.$$

Ces deux expériences sont en parfait accord avec le schéma donné figure 1.

3° Ces expériences, ainsi que d'autres effectuées en coïncidence avec l'ensemble du spectre γ, ou avec le pic de : 61 + 72 keV, avec divers temps de résolution et divers retards sur les voies A et B, nous permettent d'affirmer que les photons de 690 et 770 keV aboutissent au niveau fondamental. Pour le photon de 620 keV, 90 % aboutissent sûrement au niveau fondamental, les 10 % restant pouvant correspondre au photon déjà signalé [8], [9] de 626 keV et aboutir au niveau de 134 keV. Le photon de 870 keV semble aboutir lui aussi au niveau fondamental. Toutefois, à cause de sa très faible intensité, nous ne pouvons l'affirmer.

Le pic correspondant au photon de 136 keV étant sélectionné sur la voie A, nous ne trouvons en coïncidence, dans la région des basses énergies, que le pic : (61 + 72) keV (*fig.* 5). On peut ainsi mesurer :

$$T1/2(136) \leqslant 2.10^{-9} \text{ sec.}$$

Coïncidences β-γ. — 1° Les β étaient détectés par un scintillateur plastique. Nous avons pu ainsi mesurer des limites supérieures pour les périodes de certains niveaux :

$$T1/2\ (480) \leqslant 5.10^{-10} \text{ sec.}$$
$$T1/2\ (620) \leqslant 6.10^{-10} \text{ sec.}$$
$$T1/2\ (686) \leqslant 5.10^{-10} \text{ sec.}$$

2° Si on compare, à l'aide d'un cristal d'anthracène, le spectre β^- obtenu directement aux spectres β^- en coïncidence avec les photons de : 72, 134, 686 keV, on constate que ces derniers ont des formes similaires et une énergie maximum d'environ 630 keV. Il ne semble pas y avoir comme dans le spectre direct une transition β^- importante d'énergie maximum $\sim$ 1,3 MeV. Nous pouvons en déduire que moins de 5 % du nombre total des transitions β^- aboutissent au niveau de 134 keV. La même limite supérieure de 5 % est valable en ce qui concerne les transitions au niveau de 206 keV.

Absorption sélective du photon de 72 keV. — L'énergie d'absorption *K* du Rhénium est 71,7 keV.

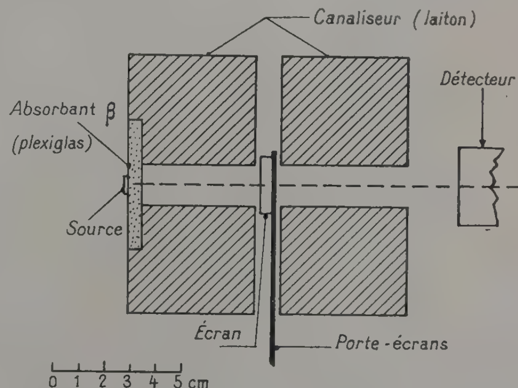


FIG. 3. — Absorption sélective du photon de 72 keV : dispositif expérimental.

Il est important de déterminer si l'énergie du photon de « 72 » keV est supérieure, ou inférieure, à

cette valeur, ceci afin de savoir si ce photon peut, ou non, être converti dans la couche K.

La mesure a d'abord été faite au compteur à scintillation. Le dispositif expérimental est représenté figure 3.

On pouvait interposer, sur le trajet du faisceau canalisé de photons, des écrans de : tungstène, rhénium, osmium. Les dispositions géométriques étaient telles que les photons X_K de l'écran, réémis de façon isotrope après absorption de photons quelconques, avaient très peu de chances (< 4 %) d'atteindre le détecteur.

On avait choisi une épaisseur de 0,4 g/cm² pour les écrans. Les valeurs calculées correspondantes du rapport N/N_0 sont résumées dans le tableau II (le nombre de photons atteignant le détecteur étant N_0 en l'absence d'écran, N l'écran étant mis en place).

TABLEAU II

E_γ	W	Re	Os
61 keV	$\sim 0{,}28$	$\sim 0{,}28$	$\sim 0{,}28$
72 keV	$\sim 0{,}027$	$\sim 0{,}02$ si $E > 71{,}7$ $\sim 0{,}3$ si $E < 71{,}7$	$\sim 0{,}28$
Énergie d'absorption critique	69,51	71,7 keV	73,9

L'interprétation des résultats était difficile, étant donné qu'on ne sépare pas, au compteur à scintillation, les raies de 61 et 72 keV. Cependant, nous avions pu voir que les courbes obtenues avec les écrans de W et Re étaient identiques et différaient des courbes obtenues avec l'écran d'Os et sans écran — ces deux dernières étant peu différentes. Une décomposition de pic : 61 + 72 keV, tentée à l'aide de ces résultats, donnait, compte tenu des différences d'efficacité de l'iodure de sodium, des différences d'absorption dans la fenêtre du compteur, des différences d'échappement du photon X_K de l'iode et du coefficient de fluorescence :

$$\frac{I X_K (61)}{I_\gamma (72)} = 5{,}1 \pm 1.$$

Ces mesures ont été reprises depuis, le détecteur étant un compteur proportionnel rempli de propane et de Xénon.

Cette fois, les photons de 61 et 72 keV sont bien séparés sur les raies d'énergie totale et encore mieux sur les raies correspondant à l'échappement hors du compteur d'un photon X_K du xénon. Les courbes obtenues : sans écran et avec les trois écrans sont données figure 4 (elles sont normalisées en multipliant les ordonnées des courbes avec écran

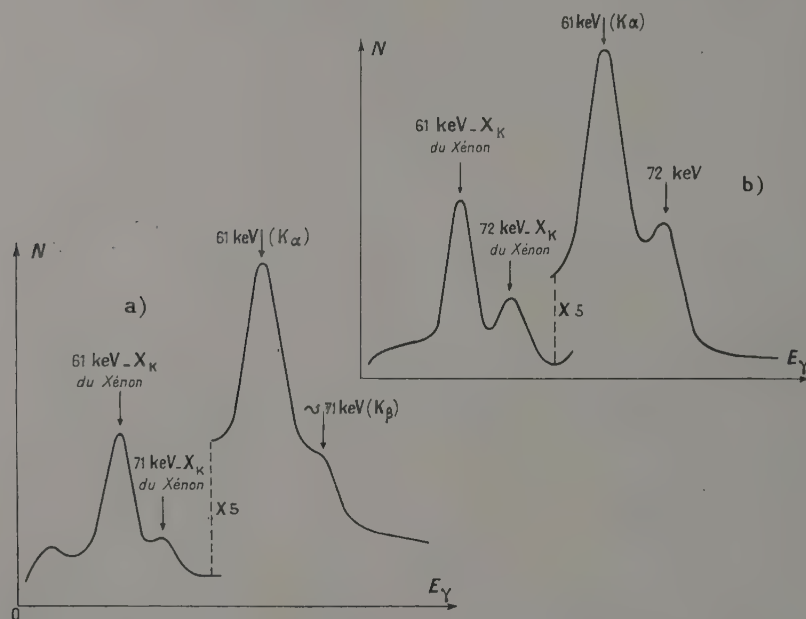


Fig. 4. — Compteur proportionnel : *a*) avec écran Re au W ; *b*) avec écran Os, ou sans écran.

par le rapport N_0/N, les temps de mesure étant les mêmes dans les quatre cas).

Les résultats précédents sont confirmés : l'énergie exacte du photon est comprise entre 71,7 et 73,9 keV. Ce photon est donc converti dans la couche K du rhénium lors de la désintégration $^{187}_{74}W \rightarrow {}^{187}_{75}Re$.

Ce résultat est en accord avec la valeur

de 72,00 keV mesurée au cristal courbe [4], [15].

La décomposition, plus sûre que celle obtenue sur les spectres de scintillation, conduit à :

$$\frac{IX_K(61)}{I_\gamma(72)} = 4{,}5$$

compte tenu des différences d'efficacité du compteur proportionnel à xénon, des différences d'absorption dans la fenêtre du compteur et du coefficient de fluorescence. Nous prendrons finalement :

$$\frac{IX_K(61)}{I_\gamma(72)} : 5 \pm 1.$$

Ce résultat, joint à la valeur :

$$\frac{I_\gamma(61+72)}{I_\gamma(134)} = 5 \pm 0{,}5,$$

obtenue sur le spectre γ direct, conduit au résultat suivant :

$$\frac{I_\gamma(72)}{I_\gamma(134)} = 0{,}85 \pm 0{,}25.$$

Coefficient de conversion α_K du photon de 72 keV. — L'expérience d'absorption critique au compteur à scintillation décrite ci-dessus, a été reprise, mais cette fois en coïncidence avec le photon de 134 keV. Les courbes obtenues : *a*) sans écran ; *b*) avec l'écran de Re sont données figure 5 (normalisées comme celles de la figure 4). On en déduit, compte tenu des différences d'efficacité de l'iodure de sodium, des différences d'absorption dans la fenêtre du compteur et du coefficient de fluorescence :

$$\frac{IX_K(61)}{I_\gamma(72)} = 1{,}6$$

Le pic de 61 keV comprenant, outre les photons X_K dus à la conversion du photons de 72 keV, ceux dus à la conversion des photons de 480 et 550 keV (qui sont en coïncidence avec le photon de 134 keV), nous pouvons seulement en déduire : $\alpha_K(72) \leqslant 1{,}6$.

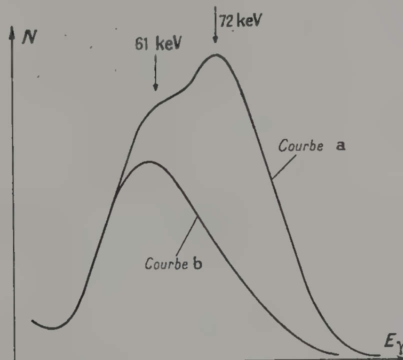


FIG. 5. — Coefficient de conversion α_K du photon de 72 keV.
Courbe *a* : coïncidence avec le photon de 134 keV sans écran.
Courbe *b* : même expérience, avec écran Re.

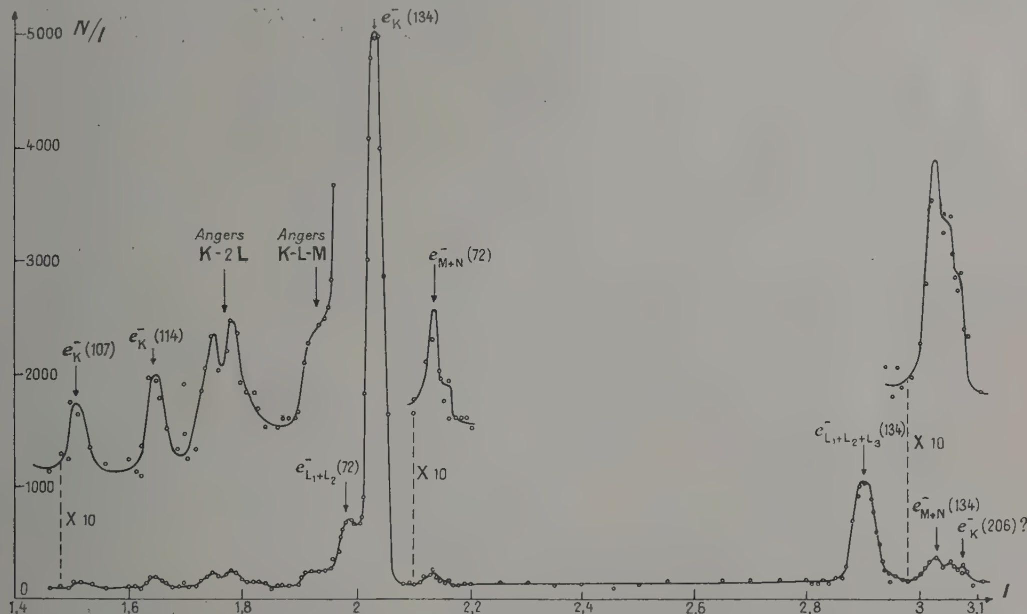


FIG. 6. — Raies de conversion des photons de basses énergies.

Le tableau III donne les valeurs de α_K pour : $E = 72$ keV, $Z = 75$ [16].

TABLEAU III

	E1	E2	M1	M2
α_K (72)	0,6	0,95	9,6	81

Nous pouvons seulement dire que la transition de 72 keV est de nature électrique (faible mélange magnétique possible).

Spectre β. — 1° La partie du spectre β correspondant aux raies de conversion des photons de basses énergies a été étudiée à l'aide du spectromètre β à lentille épaisse du laboratoire de Synthèse Atomique d'Ivry, en collaboration avec M. L. Feuvrais, que je tiens à remercier pour l'aide précieuse qu'il m'a apportée.

La figure 6 reproduit le résultat de nos mesures. Nous voyons que la bonne résolution en énergie du spectromètre nous permet de séparer la raie de conversion $\epsilon^-_{L_1+L_2}$ du photon de 72 keV de la raie de conversion ϵ^-_K du photon de 134 keV [la raie $\epsilon^-_{L_3}$ (72) est masquée par la raie ϵ^-_K (134)].

Les énergies précises de ces deux photons sont : $72 \pm 0,5$ keV et $134 \pm 0,5$ keV.

Les raies ϵ^-_{M+N} (72), ϵ^-_L (134), ϵ^-_{M+N} (134) sont également visibles. La raie ϵ^-_K (206) n'est pas séparée des raies ϵ^-_{M+N} (134). Nous pouvons seulement donner une limite supérieure :

$$e^-_K (206) \leqslant \frac{e^-_K (134)}{100}.$$

Deux faibles raies pouvant correspondre à ϵ^-_K (107) et ϵ^-_K (114), déjà signalées [8], sont visibles sur notre spectre.

2° Les raies de conversion des photons les plus énergiques ont été étudiées à l'aide du spectromètre β Slätis-Siegbahn (voir *fig.* 7). Les raies e^-_K (480), e^-_K (550) + e^-_L (480), e^-_K (630), e^-_K (686) + e^-_L (630), e^-_K (775) sont nettement visibles.

Coefficients de conversion des photons énergiques. — Ces coefficients ont été déterminés en comparant les raies de conversion de la figure 7 à la raie de conversion du photon de 661 keV du ^{137}Cs (dont le coefficient de conversion est bien connu) les intensités I_γ des photons de 661 keV (^{137}Cs) et 686 keV (^{187}W) ayant été comparées à l'aide d'un cristal INa(Tl). Les résultats obtenus sont comparés aux valeurs théoriques [16] dans le tableau IV.

TABLEAU IV

E_γ	E1	E2	M1	M2	Valeur mesurée	Nature γ
480	$6,7.10^{-3}$	$1,8.10^{-2}$	$5,6.10^{-2}$	$1,7.10^{-1}$	$1,95.10^{-2}$	E2 (M1 < 4 %)
550	5.10^{-3}	$1,3.10^{-2}$	4.10^{-2}	$1,1.10^{-1}$	$\leqslant 2,9.10^{-2}$	E1, E2 (+ M1)
630	4.10^{-3}	10^{-2}	$2,9.10^{-2}$	8.10^{-2}	$\lesssim 6.10^{-3}$	E1, E2, M1
686	$3,2.10^{-3}$	$8,2.10^{-3}$	$2,3.10^{-2}$	6.10^{-2}	$\leqslant 6,9.10^{-3}$	E1, E_2 (?)
775	$2,5.10^{-3}$	$6,5.10^{-3}$	$1,7.10^{-2}$	$4,2.10^{-2}$	$4,7.10^{-2}$	M_2

Coefficients de conversion des photons de 72 et 134 keV. — Nous avons comparé le spectre β⁻ de la figure 6 à celui obtenu — dans les mêmes conditions — à l'aide d'une source de ^{191}Os d'intensité comparable. Cette source émet un photon de 129 keV dont le coefficient de conversion α_K est connu [18] par comparaison directe de la surface de la raie de conversion K et de la surface du spectre β⁻ alimentant le niveau de 129 keV. Les intensités I_γ des photons de 129 keV (^{191}Os) et de 134 keV (^{187}W) ont été comparés dans les mêmes conditions géométriques à l'aide d'un cristal d'INa(Tl).

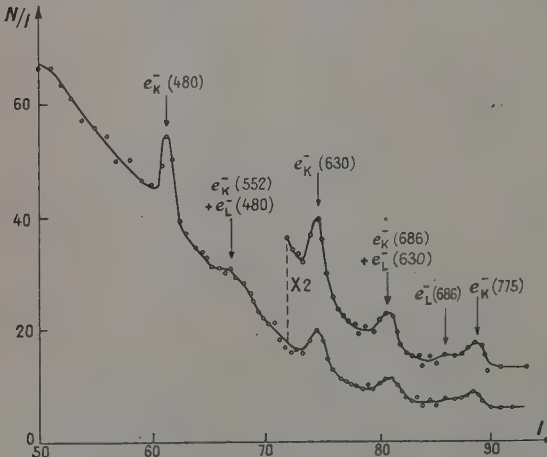


Fig. 7. — Raies de conversion des photons de grandes énergies.

Nous avons alors :

$$\alpha_{L_1+L_2} (72 \text{ keV}) = \frac{Ne^-_{L_1+L_2} (72 \text{ keV})}{Ne^-_K (129 \text{ keV})} \cdot \frac{I_\gamma (129)}{I_\gamma (72)} \cdot \alpha_K (129).$$

Nous connaissons le rapport : $\dfrac{I_\gamma (129)}{I_\gamma (134)}$ par la mesure directe ci-dessus ; nous avons mesuré précédemment : $\dfrac{I_\gamma (134)}{I_\gamma (72)}$. nous obtenons ainsi : $\dfrac{I_\gamma (129)}{I_\gamma (72)}$.

La surface $\epsilon^-_{L_1+L_2}$ (72 keV) est obtenue par une

décomposition assez précise. Connaissant la valeur : α_K (129) = 1,72 [18], nous en déduisons :

$$\alpha_{L_1+L_2}(72) = 0,23 \pm 0,13.$$

Les valeurs théoriques de $\alpha_{L_1+L_2}$ pour une énergie de 72 keV et un $Z = 75$ sont données dans le tableau V. Ces valeurs tiennent compte des effets statiques dus à la dimension finie du noyau [16].

TABLEAU V

	E1	E2	M1	M2
$\alpha_{L_1+L_2}(72)$	0,083	4,5	1,396	28,6

Nous voyons que la valeur expérimentale conduit à un assignement unique quant à la nature du photon de 72 keV : Celui-ci est E1 (mélange M2 ⩽ 1,5 %).

La valeur théorique correspondante α_{L_2} (72 keV) est : 0,028. Si nous corrigeons : e^-_K (134) en utilisant cette valeur (la correction est très faible) nous obtenons : α_K (134) par la formule :

$$\alpha_K(134) = \frac{Ne^-_K(134)}{Ne_K(129)} \times \frac{I_\gamma(129)}{I_\gamma(134)} \times \alpha_K(129)$$

d'où :

$$\alpha_K(134) = 1,5 \pm 0,4.$$

La comparaison directe des surfaces des raies e^-_K (134) et e^-_L (134) nous fournit la valeur :

$$\frac{\alpha_K}{\alpha_L}(134) \sim 5,$$

d'où nous tirons α_L (134) = 0,3 ± 0,1.

Les valeurs théoriques de α_K et α_L, pour une énergie de 134 keV, et un $Z = 75$, tenant compte de l'effet statique dû à la dimension finie du noyau [16], [17], sont données dans le tableau VI.

TABLEAU VI

	E1	E2	E3	E4	M1	M2	M3	VALEUR MESURÉE
α_K (Rose)	0,215	0,59	1,23	2,64	3,05	21,5	71	1,5 ± 0,4
α_K (Sliv)	0,148	0,46	1,21	3,23	1,88	11,6	42,5	
α_L (Rose)	0,035	1,4			0,42	7,3		0,3 ± 0,1

L'ensemble de ces résultats conduit pour le photon de 134 keV à un assignement :

$$\text{M1} + \text{E2} \ (\gamma_E/\gamma_M < 0,25).$$

(Nous éliminons la possibilité E1 + M2 car il s'agit du premier niveau de rotation obtenu par excitation coulombienne.)

Probabilité de la transition de 206 keV. — Nous avons vu plus haut que :

$$\frac{I_\gamma(206)}{I_\gamma(134)} \leqslant 0,1.$$

On a donc, en prenant le plus petit coefficient de conversion possible pour le photon de 134 keV :

$$\frac{I \text{ trans } (206)}{I \text{ trans } (134)} \leqslant 0,05.$$

L'expérience conduisant à cette valeur ayant été faite en coïncidence retardée avec le photon de 480 keV, nous avons :

$$I \text{ trans } (72) = I \text{ trans } (134),$$

d'où :

$$\frac{I \text{ trans } (206)}{I \text{ trans } (72)} \leqslant 0,05.$$

Nous avons donc sûrement P_γ étant la probabilité de transition : $P_\gamma(206) \leqslant 0,05$. P niveau (206), d'où

$$P_\gamma(206) \leqslant 7,7.10^4 \text{ (sec}^{-1}).$$

La théorie de Weisskopf donne :

$$P_\gamma(\text{E1}) = 3,93.10^{13}.\text{S}$$
$$P_\gamma(\text{M2}) = 1,25.10^6.\text{S}$$
$$P_\gamma(\text{E3}) = 0,66.10^2.\text{S}$$

Si le photon de 206 keV était un E1, le facteur d'inhibition $F = \frac{P\gamma \text{ théo}}{P\gamma \text{ exp}}$ serait :

$$F \geqslant 5.10^8.$$

Pour un M2, nous avons : $F \geqslant 17$, ce qui semble plus raisonnable.

Probabilité de la transition de 72 keV. — Nous venons de voir que : $\frac{I \text{ Trans } (206)}{I \text{ Trans } (72)} \leqslant 0,05$; le niveau de 206 keV se désexcite donc principalement par émission du photon de 72 keV. On a :

$$\tau_\gamma(72) = [1 + \alpha(72)].\tau \text{ obs}.$$

On en déduit :

$$P_\gamma = 0,65(\pm 0,25).10^6 \text{ (sec}^{-1}).$$

La théorie de Weisskopf donne :

$$P_\gamma(\text{E1}) = 1,82.10^{12}.\text{S}.$$

Le facteur d'inhibition est donc :

$$F = 3,5(\pm 1,5).10^6.$$

Discussion. — Le spin mesuré [10] de l'état fondamental des noyaux $^{187}_{75}$Re et $^{185}_{75}$Re est 5/2. Les courbes de Nilsson [19] montrent qu'il s'agit dans les deux cas du niveau 5/2 + (orbite 31). Le niveau de 134 keV est le premier niveau de rotation 7/2 + trouvé par excitation coulombienne. Le spin du niveau de 206 keV ne peut être que : 9/2 —, 7/2 —, 5/2 —, à cause de la nature E1 de la transition de 72 keV. Nous adopterons le spin 9/2 — ce qui conduit à une nature M2 pour la transition de 206 keV (les deux autres spins conduiraient à un E1 avec un facteur d'inhibition énorme).

Une orbite 9/2 — existe d'ailleurs dans cette région (orbite 32). Elle apparaît comme état excité à 496 keV du $^{183}_{75}$Re [20]. Le spin du niveau fondamental de ce noyau est aussi 5/2 + (orbite 31) avec un premier niveau de rotation 7/2 + à 114 keV. Une transition E1 de 382 keV partant du niveau 9/2 — aboutit au niveau 7/2 +. Le facteur d'inhibition correspondant est : $F = 2.10^6$, ce qui est en excellent accord avec nos résultats ($F = 3{,}5$ $(\pm 1{,}5).10^6$) et confirme l'identité des orbites.

Le photon de 72 keV est alors E1 (i), « interdit — K » (ordre d'interdiction 1) et le photon de 206 keV est M2 (u). Le signe (i) signifie que la transition est inhibée parce qu'elle viole les règles de sélection asymptotiques [23], [25] ; (u) signifie que le transition ne viole pas ces règles.

Pour le niveau fondamental de $^{187}_{74}$W (113 neutrons) Nilsson prévoit les spins : 1/2 —, 3/2 —, 7/2 —.

$^{183}_{74}$W et $^{185}_{76}$Os (109 neutrons) ont un spin 1/2 — (orbite 71) [11], [21], [22], [23].

$^{187}_{76}$Os et $^{185}_{74}$W (111 neutrons) ont respectivement les spins : 1/2 — et 3/2 — [22], [23], [24].

$^{189}_{76}$Os (113 neutrons) a un spin 3/2 — [23].

Ceci semble conduire au spin 3/2 — (orbite 62) pour $^{187}_{74}$W (113 neutrons). Nous adopterons cette valeur ; en effet :

1° Le spin 7/2 — conduirait à des transitions β^- importantes au niveau de 134 et 206 keV.

2° Le spin 1/2— alimenterait des niveaux excités de même nature que ceux trouvés dans la désintégration : $^{185}_{76}$Os $\to$ $^{185}_{75}$Re [22] ; or, la différence est nette : le niveau le plus peuplé (79 %) de $^{185}_{75}$Re est un niveau 1/2 + qui se désexcite par une transition unique au niveau fondamental, alors que le niveau le plus peuplé (70 %) de $^{187}_{75}$Re se désexcite à la fois aux niveaux : 5/2 +, 7/2 +, 9/2 —, avec des intensités comparables. Le spin 1/2 — pour $^{187}_{74}$W est ainsi éliminé.

En ce qui concerne le niveau de 686 keV, le seul spin en accord avec une transition β^- dominante à ce niveau, avec les intensités relatives des transitions de : 480, 552, 686 keV et avec leurs coefficients de conversion est : 5/2 —. Une orbite 5/2 — existe dans cette région, provenant de la couche h 9/2 (voir la courbe V de la référence [23]). Ceci conduit à une nature E2 (i) pour le photon de 480 keV et à une nature E1 (i) pour les photons de 552 et 686 keV. La limite supérieure mesurée de la période du niveau de 686 keV d'une part, le fait que la transition de 480 keV est E2 d'autre part, permettent de calculer pour la transition E1 de 686 keV un facteur d'inhibition :

$$F = 8(\pm 5).10^5.$$

Étant donné le caractère M2 de la transition de 775 keV, le spin du niveau de 775 keV est 1/2 —.

Nous ne possédons pas assez de données pour assigner des spins aux niveaux de 630 keV et 866 (ou 1 000) keV.

Le schéma de niveaux de la figure 8 résume

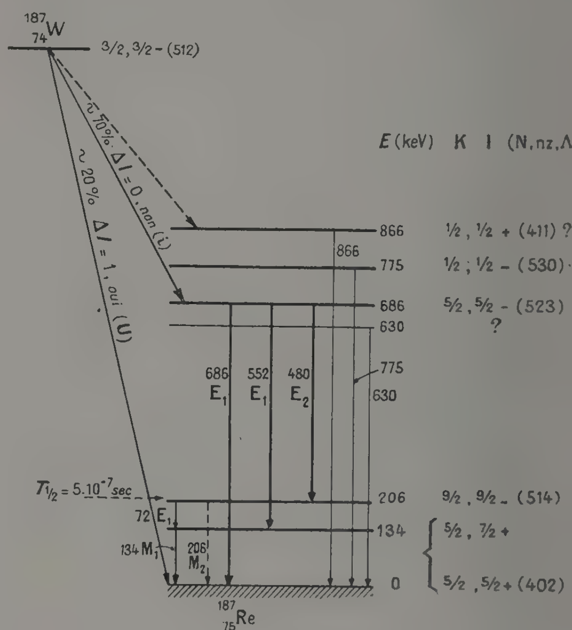


FIG. 8. — Schéma de niveaux de $^{187}_{75}$Re.

l'ensemble de ces conclusions. Les schémas de niveaux de $^{185}_{75}$Re et $^{183}_{75}$Re sont donnés sur la figure 8 *bis*. Les différences sont dues au fait que les spins des noyaux de départ sont différents dans les trois cas.

Quelques remarques s'imposent au sujet du schéma donné figure 8 :

1° Notre schéma donne : $\Delta I = 1$, oui, (u) pour le spectre d'énergie maximum : 1,33 MeV. La valeur expérimentale : ft = 7,5 — 8 est en accord avec cette détermination ($\Delta I = 2$, oui, conduirait à une valeur nettement plus élevée pour le produit ft).

Cependant, ce spectre est connu pour avoir la forme « unique » qui indique : $\Delta I = 2$, oui. Il y a là un désaccord qu'il est nécessaire d'éclaircir.

2° Une expérience de corrélation angulaire [12] entre les photons de 72 et 134 keV, a été réalisée. Les auteurs, admettant une cascade :

$$3/2 + (\text{E2})\ 7/2 + (\text{M1} + \text{E2})\ 5/2 +$$

trouvent un bon accord en admettant un faible mélange E2.

Si nous reprenons leurs résultats avec la cascade : 9/2 — (E1) 7/2 + (M1 + E2) 5/2 +, l'accord est possible, mais nous trouvons un pourcentage de

mélange : $\frac{\gamma_{E_2}}{\gamma_{M_1}} > 35\ \%$, ce qui est nettement trop élevé. (Les cascades :

$$7/2 \rightarrow (E1)\ 7/2 + (M1 + E2)\ 5/2 +$$

ou : $5/2 - (E1)\ 7/2 + (M1 + E2)\ 5/2 +$ conduiraient à des pourcentages de mélange :

$$\frac{\gamma_{E_2}}{\gamma_{M_1}} \leqslant 4\ \% \text{ et : } 12\ \% < \frac{\gamma_{E_2}}{\gamma_{M_1}} < 36\ \%,$$

mais les spins 7/2 — et 5/2 — pour le niveau de 206 keV ont été éliminés à cause de la très faible intensité de la transition de 206 keV.) Il subsiste là aussi une difficulté.

Je tiens à remercier ici le Dr S. G. Nilsson pour la discussion que nous avons eue au Congrès International de Physique Nucléaire de Paris, au sujet de la désintégration $^{187}_{74}W \rightarrow ^{187}_{75}Re$ et pour les derniers résultats sur la classification des noyaux

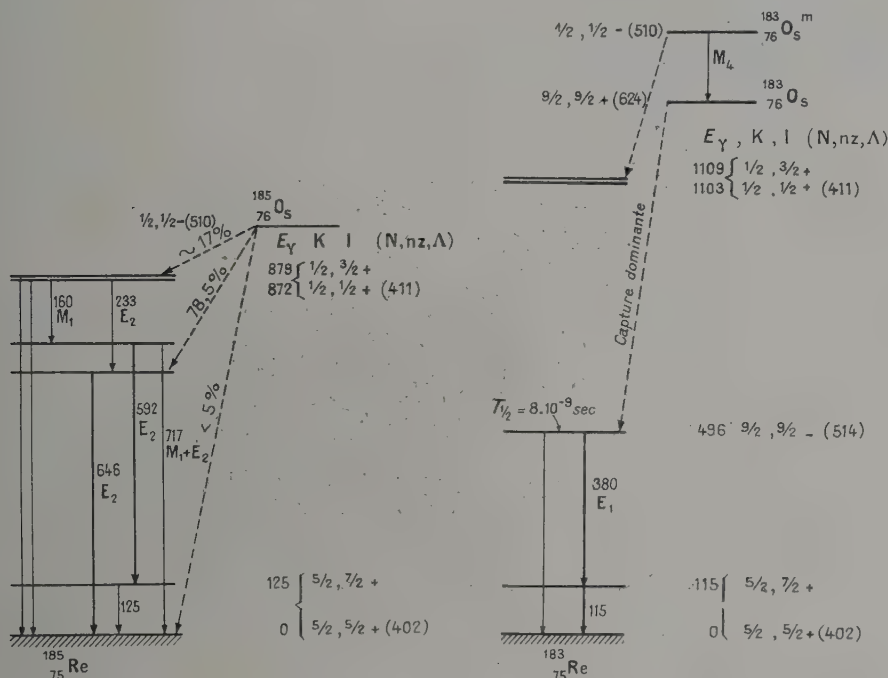


Fig. 8 *bis*. — Schémas de niveaux de $^{185}_{75}$Re et $^{183}_{75}$Re.

déformés de A impair [23] qu'il m'a aimablement communiqués.

Je tiens à remercier aussi Mme N. Marty, qui par de constantes discussions au cours de cette étude et par de nombreux conseils, m'a considérablement aidé. C'est elle qui a mis au point avec M. David-Boyer le dépôt cathodique de tungstène sur feuille d'aluminium, nécessaire pour les études au spectromètre β.

Je remercie également M. David-Boyer pour les nombreuses sources β qu'il m'a préparées par cette méthode.

Manuscrit reçu le 22 juillet 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Valley (G. E.), *Phys. Rev.*, 1941, **59**, 686.
[2] Schwarz (W. M.) et Pool (M. L.), *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 122.
[3] Peacock (C. L.) et Wilkinson (R. G.), *Phys. Rev.*, 1948, **74**, 301.
[4] Muller, Hoyt, Klein et Dumond, *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 789.
[5] Sunyar (A. W.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 387 A.
[6] Germagnoli (E.), Malvicini (A.) et Zappa (L.), *Nuovo Cimento*, 1953, **10**, 1388.
[7] McGowan (F. K.) et Klema (E. D.), *O. R. N. L.*, 1164.
[8] Cork, Brice, Nester, Le Blanc, Martin, *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1291.
[9] Dubey, Mandeville, Mukerji et Potnis, *Phys. Rev.*, 1957, **106**, 786.
[10] Segel (S. L.) et Barnes (R. G.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 638.
[11] Huus, Bjerregaard et Elbeck, Kgl Danske Videnskab Selskab. *Mat. Fys. Medd*, 1956, **30**, n° 17. Goldring (G.) et Paulissen (G. T.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1314. Davis, Divatia, Lind et Moffat, *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 1808. Wolicki (E. A.), Fagg (L. W.) et Geer (E. H.), *Phys. Rev.*, 1957,

105, 238. Bernstein (E. M.) et Lewis (H. W.), *Phys. Rev.*, 1957, **105**, 1524. Chupp (E. L.), Du Mond (J. W. M.), Gordon (F. J.), Jopson et Mark (H.), *B. A. P. S.*, série II, 1958, **3**, 55, n° 1. McGowan (F. K.) et Stelson (P. H.), *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 911.

[12] Von Behrend (H. J.) et Neuert (H.), *Z. Naturf.*, 1958, **13**a, 208.

[13] Macklin (R. L.), Lazar (N. H.) et Lyon (W. S.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 505.

[14] Vergnes (M.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 579.

[15] Beckman (O.), *Nuclear Instr.*, 1958, **3**, n° 1 27.

[16] Rose (M. E.), K Shell internal conversion coefficients (finite nuclear size included).

[17] Sliv (L. A.) et Band (I. M.), Table des coefficients de conversion interne des rayonnements γ, partie 1. Couche K : *Acad. Naouk*, U. R. S. S., 1956.

[18] Feuvrais (L.), Communication privée.

[19] Mottelson (B. R.) et Nilsson (S. G.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1615.

[20] Nexton (J. O.) et Shirley (V. S.), *B. A. P. S.*, 1957, II, **2**, 395.

[21] Johns (M. W.), Nablo (S. V.) et King (W. J.), *Canad. J. Phys.*, 1957, **35**, n° 10.

[22] Marty (N.) et Vergnes (M.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 233.

[23] Mottelson (B. R.) et Nilsson (S. G.), The Intrinsic States of Odd-A nuclei having ellipsoïdal equilibrium Shape (communication privée).

[24] Marty (N.) et Vergnes (M.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 1013.

[25] Alaga (G.), *Nuclear Physics*, 1955, **4**, 4, 625.

L'ABSORPTION DES ULTRASONS PAR CERTAINES CÉTONES

Par S. PARTHASARATHY et V. NARASIMHAN,
National Physical Laboratory of India, New Delhi.

Résumé. — La célérité des ultrasons et leur coefficient d'absorption ont été mesurés dans plusieurs cétones à différentes températures et les résultats comparés à ceux déjà donnés par divers auteurs. Pour la plupart des liquides étudiés, le coefficient de variation de l'absorption avec la température était positif dans l'intervalle considéré dans ce travail. Seule, la cyclohexanone montra un coefficient de température positif jusqu'à 30° et négatif au-dessus.

Abstract. — The ultrasonic velocity and absorption coefficient of several ketones were measured at several temperatures and the results compared with those of earlier workers in the field. For most of the liquids studied the temperature coefficient of absorption was positive in the range of temperature employed in this work. Cyclohexanone was the one liquid which showed a positive temperature coefficient upto 30 °C and a negative temperature coefficient thereafter.

1. **Introduction.** — De Groot et Lamb [1] et Heasell et Lamb [2] ont mesuré les coefficients d'absorption de plusieurs aldéhydes et cétones pour les ultrasons par la méthode des impulsions brèves. Ces expériences visaient à obtenir des données certaines pour des liquides purs sur lesquels la littérature fournissait des résultats contradictoires. L'absorption observée dans les cétones était attribuée à la perturbation de l'équilibre entre des isomères optiques par le passage de l'onde sonore.

L'étude de l'absorption des ultrasons dans les liquides, donne des valeurs expérimentales du coefficient d'absorption toujours supérieures à celles prévues par la théorie classique de Stokes. On a essayé d'expliquer cet excès en formulant une sorte d'effet de relaxation thermique ou de structure, ou en admettant une viscosité de volume. Dans certains cas, on a tenté de l'expliquer par l'existence d'un temps de relaxation nécessaire au retour à leur position d'équilibre des molécules perturbées par l'onde sonore [2].

Parthasarathy [3, 4, 5] a essayé d'exprimer le coefficient d'absorption observé (α/ν^2 exp.) en fonction du coefficient classique (α/ν^2 class.), en attribuant les grands coefficients d'absorption des liquides anormalement absorbants à la grande valeur du rapport des chaleurs spécifiques de ces liquides.

Les travaux effectués dans ce laboratoire sur des séries homologues de carbures d'hydrogène [6] montrent que le coefficient de température de l'absorption varie de façon systématique.

Les termes inférieurs de la série ont des coefficients de température positifs, quelques termes suivants en ont un sensiblement nul, et celui des termes supérieurs est négatif. La vitesse de propagation des ultrasons, cependant, décroît lorsque la température croît, dans tous les liquides de la série.

Nous avons entrepris les expériences relatées ici pour voir si les relations trouvées dans le cas des carbures d'hydrogène s'étendaient à la série des cétones, et aussi pour mesurer les coefficients de température de la célérité et de l'absorption dans ces liquides, pour lesquelles la littérature ne fournissait pas de données satisfaisantes.

2. **Expériences.** — Le coefficient d'absorption et la vitesse de propagation des ultrasons ont été mesurés par la méthode des impulsions brèves. La fréquence du cristal était de 7 MHz, et on utilisait son troisième harmonique. Les détails du montage et son fonctionnement ont été indiqués précédemment [7]. Un des inconvénients de ce montage était l'emploi d'une plaque d'acier inoxydable comme réflecteur pour renvoyer les trains d'ondes vers le cristal émetteur. Cette plaque et la tige qui la portaient étaient partiellement immergées dans le liquide étudié. Quand la température de ce liquide était supérieure ou inférieure à la température ambiante, en approchant ou éloignant le réflecteur du cristal on modifiait suffisamment la température du liquide pour rendre instable l'inscription de l'oscilloscope cathodique. Ce défaut a été partiellement supprimé dans les recherches actuelles en utilisant une tige de verre avec des extrémités planes et parallèles comme réflecteur, au lieu de la plaque d'acier. On obtient ainsi très rapidement une température uniforme dans le liquide pendant la durée d'une expérience.

Le liquide étudié était contenu dans un cylindre d'acier inoxydable à double paroi, et maintenu à température constante par une circulation d'eau contrôlée par un thermostat. On pouvait faire varier la température choisie entre 15 et 55 °C.

L'expérience consistait à obtenir sur l'écran de l'oscilloscope un écho dont on réglait, avec l'atténuateur à 0 db, la hauteur d'inscription à 1 pouce. On augmentait ensuite l'atténuation par paliers

de 2 db et notait les positions du réflecteur correspondant à des échos de la même valeur de 1 pouce. Les observations étaient faites à différentes températures.

Pour déterminer les célérités des ultrasons, le réflecteur était amené très près du cristal, et la durée des émissions augmentée de façon à obtenir un système d'ondes stationnaires entre le cristal et le réflecteur. Un dispositif micrométrique précis permettait de déplacer lentement le réflecteur, et la variation de hauteur des inscriptions permettait de déterminer la demi-longueur d'onde ; donc la célérité.

Les expériences ont été faites avec six cétones : l'acétone, la méthyléthylcétone, la diéthylcétone, la méthyl-n-propylcétone, l'acétophénone et la cyclohexanone, toutes analytiquement pures et distillées avant usage.

3. **Résultats et discussion.** — *a*) Vitesse de propagation et son coefficient de température.

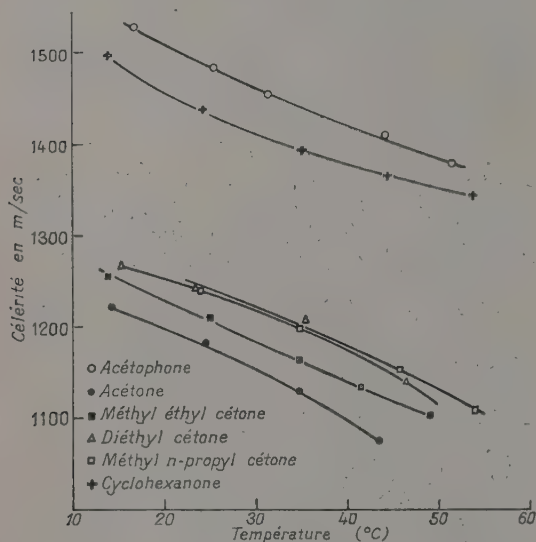


Fig. 1.

— Les résultats obtenus, pour la fréquence de 21,59 MHz sont donnés par la figure 1. On voit tout de suite que les vitesses, à toutes températures, sont plus grandes dans les composés aromatiques que dans les composés aliphatiques, résultat déjà signalé par l'un de nous, S. P. [8]. Les valeurs des célérités déterminées ici par la méthode des impulsions brèves concordent très bien avec celles mesurées antérieurement [9]. Les coefficients de température des célérités sont donnés dans le tableau I.

TABLEAU I

Coefficient de température de la célérité

Liquide	$\Delta v / \Delta T$ $ms^{-1}/°C$
1. Acétone	— 4,8
2. Méthyl éthyl cétone	— 4,4
3. Méthyl n-propyl cétone	— 4,3
4. Diéthyl cétone	— 4,3
5. Cyclohexanone	— 3,9
6. Acétophénone	— 4,5

Ils sont négatifs dans tous les cas, comme c'était prévu.

On a montré [9] que pour les termes d'une série organique homologue, les célérités ultrasonores croissent avec le poids moléculaire, c'est-à-dire que les termes supérieurs ont des célérités plus grandes. C'est le cas aussi pour les cétones, qui suivent la règle générale : la célérité dans l'acétone est 1 200 m/s tandis qu'elle est de 1 256 m/s dans la méthyl-n-propyl cétone à 20 °C.

b) Coefficients d'absorption et variation avec la température. — La figure 2 représente les coefficients d'absorption α/ν^2 et leur variation avec la température dans le cas des cétones étudiées sauf la cyclohexanone.

Le tableau II compare les valeurs des coefficients d'absorption mesurés dans ces expériences avec ceux obtenus par d'autres auteurs à la seule température de 25 °C.

TABLEAU II

Coefficients d'absorption des cétones a 25 °C
$\alpha/\nu^2 \times 10^{17}$ cm^{-1} sec^2

Liquide	Heasell et Lamb [2]	de Groot et Lamb [1]	S. P. [9]	Présent travail	Valeur classique	$1/\alpha . \partial\alpha/\partial t$
1. Acétone	25,7 à 24,4 °C	28,5	17 à 18 °C	37,0	6,3	0,015
2. Méthyl éthyl cétone	—	26,5	33 à 23 °C	32,1	7,6	0,009
3. Méthyl n-propyl cétone	—	—	—	41,0	8,3	0,002
4. Diéthyl cétone	—	25,3	—	37,0	8,3	0,006
5. Acétophénone	—	—	189 à 23 °C	51,5	12,8	0,0017
6. Cyclohexanone	72,8 à 24,6 °C	—	59 à 23 °C	90,0	19,7	0,015 de 15 à 30 °C — 0,0085 de 30 à 54 °C

On voit que, dans le cas de l'acétone, CH_3COCH_3, la valeur de α/ν^2 donnée par le présent travail concorde très bien avec celles indiquées ailleurs [10].

Le coefficient de température pour l'absorption dans ce liquide est positif, et a pour valeur 0,015 par °C. Ceux de la méthyl-éthyl-cétone et de la diéthyl-cétone, positifs également sont de 0,009 et 0,006 par °C respectivement. La méthyl-n-propyl-cétone, $CH_3COCH_2CH_2CH_3$, a un coefficient de température de l'absorption positif et très faible, $0,002.10^{-17}$ cm^{-1} s^2. Il en est de même pour l'acétophénone pour laquelle la valeur est $0,0017.10^{-17}$ cm^{-1} s^2.

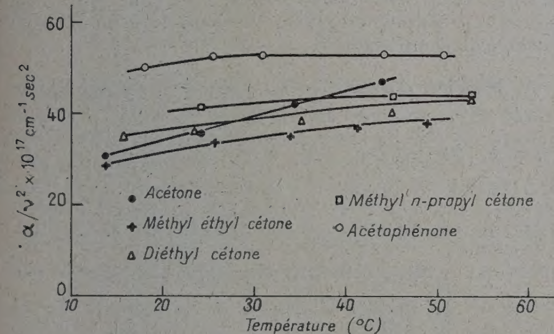


Fig. 2.

L'acétone, la méthyl-éthylcétone et la méthyl-n-propylcétone formant une série homologue on peut leur appliquer les lois correspondantes. On sait que le coefficient de température de l'absorption décroît quand on s'élève dans la série, et il est possible qu'il devienne négatif pour des termes plus élevés.

Les variations du coefficient d'absorption de la cyclohexanone sont représentées sur la figure 3. C'est l'un des quelques liquides qui ont un coefficient de température de l'absorption positif dans un certain intervalle de températures, et négatif au-dessus.

Young et Petrauskas ont montré [11] que le même phénomène se produit pour le 2-méthyl butane entre 180 et 260 °K. Cet effet a lieu pour toutes les fréquences, mais est plus marqué aux fréquences élevées. L'origine de ce passage du coefficient d'une valeur positive à une négative serait une transformation en isomère optique produite par le passage de l'onde sonore. Le comportement analogue de la cyclohexanone serait dû à une autre cause ; ce coefficient est de + 0,015 par °C entre 14 et 30 °C et de — 0,0085 entre 30 et 50 °C. La valeur de α/ν^2 donnée ici est de $89,7.10^{-17}$ cm^{-1} s^2.

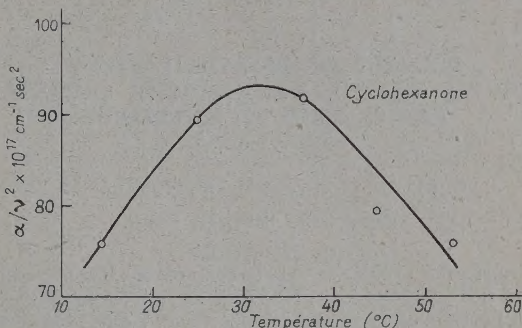


Fig. 3.

Il est clair que les pertes par frottement dues au passage du son ne sont pas la seule cause d'une absorption aussi forte que celle des liquides étudiés ici. Les résultats fournis ici, et obtenus pour une seule fréquence et différentes températures, ne suffisent pas pour trouver l'explication de l'absorption observée, qui est plusieurs fois plus grande que la valeur classique. Il faut évidemment un plus grand nombre de données, et des travaux sur ce sujet sont en cours.

Manuscrit reçu le 11 mai 1958.

BIBLIOGRAPHIE

[1] de Groot (M. S.) et Lamb (J.), *Proc. Roy. Soc.*, 1957, **242**, 36.

[2] Heasell (E. L.) et Lamb (J.), *Proc. Phys. Soc.*, 1956, B **69**, 869.

[3] Parthasarathy (S.) et Guruswamy (D. S.), *Ann. Physique*, 1955, **16**, 31.

[4] Parthasarathy (S.) et Guruswamy (D. S.), *Ann. Physique*, 1955, **16**, 287.

[5] Parthasarathy (S.), Conférence de Bellevue, Paris, juillet 1957.

[6] Parthasarathy (S.), Pancholy (M.) et Chhapgar (A. F.), « Ultrasonic Absorption in Some Homologous Series of Organic Liquids. — Part II : Hydrocarbons en cours de publication dans *Il Nuovo Cimento*.

[7] Parthasarathy (S.) et Pancholy (M.), *Angewandte Physik*, 1957, X, 193.

[8] Parthasarathy (S.), *Curr. Sc.*, 1938, **6**, 322.

[9] Parthasarathy (S.), *Proc. Ind. Acad. Sc.* (A), 1935, **2**, 497.

[10] Parthasarathy (S.), Chari (S. S.) et Srinivasan (D.), *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 541.

[11] Young (J. M.) et Petrauskas (A. A.), *J. Chem. Phys.*, 1956, **25**, 943.

LETTRES A LA RÉDACTION

FIXATION DU BIOXYDE D'AZOTE SUR LA VAPEUR DE MERCURE IRRADIÉE PAR SA RAIE DE RÉSONANCE $\lambda_0 = 2\,537$ Å

Par J. L. Cojan et R. Taboue,
Faculté des Sciences, Caen.

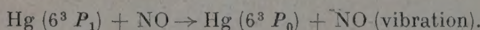
Lorsqu'on éclaire la vapeur de mercure par sa radiation de résonance $\lambda_0 = 2\,537$ Å, une partie des atomes est portée sur le niveau excité $6^3\,P_1$; elle manifeste alors une réactivité particulière. C'est ainsi que l'oxygène et l'eau, normalement inactifs, entrent en combinaison [1], [2]. Si on obtient un produit de fixation stable, et si l'irradiation est effectuée avec une seule des composantes hyperfines, on réalise la séparation photochimique de l'isotope du mercure correspondant ; il faut toutefois que les produits de réaction ne soient pas spontanément réactifs avec le mercure [3] [4], [5], [6].

Le même procédé conduit à un enrichissement du mercure en isotope abondant (^{202}Hg) lorsqu'on irradie la vapeur avec un arc émettant toute la structure hyperfine du mercure naturel. Imaginons que celui-ci ne contienne que deux isotopes a et b, a étant deux fois plus abondant que b ; si les deux composantes hyperfines correspondantes sont bien séparées, leurs intensités sont aussi dans le rapport 2. Les absorptions A_a et A_b de la vapeur pour ces deux composantes rapport entre l'énergie émise par l'arc et celle qui est absorbée) vérifient, lorsqu'elles sont très faibles, la relation $A_a = 2A_b$. L'irradiation de la vapeur produit alors 4 fois plus d'atomes excités pour a que pour b ; le mercure fixé est enrichi en isotope a dont l'abondance par rapport à b passe de 2 à 4. Des nécessités de rendement conduisent à utiliser des absorptions plus importantes pour lesquelles

$$A_b < A_a < 2A_b$$

l'enrichissement est alors moins accentué.

Sur la suggestion de M. Vialle, Professeur de Chimie à la Faculté des Sciences de Caen, nous avons examiné le comportement du bioxyde d'azote NO ; Noyes [7] avait déjà remarqué la très grande section de choc du processus d'extinction de la raie de résonance du mercure par NO, mais l'avait attribuée à la transition :



$$\text{Hg}\,(6^3\,P_1) + \text{NO} \rightarrow \text{Hg}\,(6^3\,P_0) + \text{NO (vibration)}.$$

A. **Dispositif expérimental.** — Un arc à vapeur de mercure (S), fonctionnant à basse pression et refroidi par une circulation d'air (température de régime 50° C) est enroulé autour d'un tube (T) de silice fondue (Heraus M38) transparent pour $\lambda_0 = 2\,537$ Å mais opaque pour $\lambda = 1\,849$ Å. Une cuve d'absorption (C) à faces parallèles, protégée du rayonnement de l'arc S, est soudée au tube T ; elle est traversée par le rayonnement de résonance 2 537 Å émis par un arc à vapeur de mercure (S′) fonctionnant à basse pression dans des conditions de stabilité convenables. L'intensité I de ce rayonnement, après traversée de C, est mesurée par une cellule photomultiplicatrice ; on peut ainsi connaître la pression partielle du mercure dans un mélange gazeux contenu dans T.

B. **Fixation du mercure au cours de l'irradiation.** — Après avoir procédé au pompage du tube T et à la mesure de $I = I_0$ lorsque la pression est inférieure à 10^{-5} mm, on met le tube T en communication avec une goutte de mercure à la température ambiante ; lorsqu'il est rempli de vapeur saturante, on l'isole à nouveau. On admet alors NO dans le tube T, sous une pression $\left(\frac{1}{10}\,\text{mm}\right)$ suffisamment faible pour que la perturbation du spectre d'absorption du mercure qu'elle provoque, par effets Lorentz de déplacement et d'élargissement des centres hyperfins, soit négligeable (en particulier, la valeur de I ne varie pas). En allumant S, on constate que I croît jusqu'à atteindre la valeur de transparence totale I_0, au bout de 30 minutes environ. Il n'y a plus alors de mercure libre dans le tube T ; simultanément, la pression de NO baisse.

Le mercure entre donc en combinaison avec NO, *par l'intermédiaire de son état excité* 6^3P_1.

Remarque : La masse de mercure mise en jeu dans cette opération comprend outre celle de la vapeur saturante présente initialement, celle du mercure adsorbé sur la paroi du tube T, qui est plusieurs dizaines de fois supérieure à la première.

C. **Composition théorique du mercure fixé.** — La quantité d'un isotope donné dans le produit de fixation est proportionnelle au produit de l'intensité dans l'arc S de la composante hyperfine correspondante par l'absorption A de la vapeur.

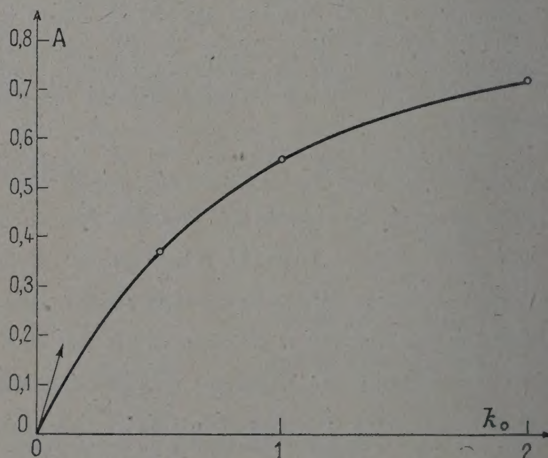


Fig. 1. — Variation de l'absorption A en fonction du paramètre k_0.

Les résultats de Noyes [8] fournissent le schéma hyperfin de la raie 2 537 Å émise par l'arc S.

L'absorption A, pour une composante hyperfine donnée dépend de la géométrie du montage, du profil spectral d'émission de S, et de l'abondance de l'isotope dans la vapeur, par l'intermédiaire de :

$$k_0 = \frac{2}{\Delta\nu_D}\sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}}\cdot\frac{\lambda_0^2}{8\pi}\cdot\frac{g_2}{g_1}\frac{N}{\tau}$$

N : nombre d'atomes de l'isotope considéré dans l'unité de volume de la vapeur.
$\Delta\nu_D$: largeur Doppler.
g_1, g_2 : poids statistique des niveaux de départ et d'arrivée.
τ : durée de vie de l'état excité.

Nous avons déterminé (*fig.* 1) dans les conditions de notre montage les variations de A en fonction de k_0, pour un profil spectral représenté par :

$$I(\nu) = \exp\left[-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu}\right)^2\right]$$

qui donne de bons résultats pour ce type d'arc

$$(\Delta\nu = 1{,}3\ \Delta\nu_D).$$

Lorsque l'irradiation a lieu en présence d'une goutte de mercure la réaction cesse lorsqu'il n'y a plus de NO dans le tube T (la pression est alors un peu inférieure à la moitié de sa valeur initiale). En supposant que l'évaporation de la goutte est assez rapide pour que la composition de la vapeur soit encore celle du mercure naturel, on trouve pour composition théorique du mercure fixé les proportions suivantes :

	^{198}Hg	^{199}Hg	^{200}Hg	^{201}Hg	^{202}Hg	^{202}Hg
Mercure naturel.	10,02	16,84	23,13	13,22	29,80	6,85
Mercure fixé....	8,53	14,66	24,09	11,96	34,04	6,67

(la température de la goutte étant de 6° C).

D. **Analyse du mercure fixé.** — L'expérience étant conduite comme en C, on isole la goutte de mercure du tube T qui est pompé sous vide poussé jusqu'à ce que le mercure cesse de se dégager des parois. En allumant l'arc S, on constate un nouveau dégagement de mercure (apparition d'une absorption dans C) ; il provient surtout de la décomposition photochimique du produit de fixation déposé sur les parois ; en refroidissant, à — 10° C environ, une partie du tube, la vapeur se condense et présente une pression fixe. On dirige alors à travers C le rayonnement de S′, après interposition d'un filtre magnétique hyperfin [9] réglé de manière à isoler, dans la raie 2 537 Å :

a) la composante $B_{199}\ c_{201}$,
b) les composantes X_{200} et X_{202}.

On en mesure l'absorption par la cuve C. On détermine ensuite les tensions de vapeur de mercure naturel qui donnent respectivement les mêmes absorptions ; on en déduit les valeurs de k_0 correspondantes.

La valeur moyenne du rapport de ces deux valeurs de k_0 a été trouvée égale à 2,40 lors d'une dizaine d'opérations ; elle est très voisine de celle (2,50) que l'on déduit des résultats de C, et notablement différente de celle (1,98) que donne le mercure naturel. On a donc réalisé un enrichissement du mercure en isotope 202, qui porte sur une masse de l'ordre de 10^{-5} g. On pourrait remplacer S par un arc rempli avec cette vapeur et obtenir un enrichissement plus notable ; l'itération de ce procédé doit permettre de parvenir à du mercure ^{202}Hg presque pur.

Les résultats obtenus montrent que le mercure excité se fixe seul ou presque seul dans le processus étudié qui semble donc convenir comme base d'un procédé d'enrichissement isotopique du mercure.

Lettre reçue le 30 septembre 1958.

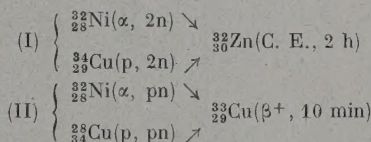
BIBLIOGRAPHIE

[1] Zuber, *Helv. Phys. Acta*, 1936, **9**, 285.
[2] Beutler (H.) et Rabinovitch, *Zeit. Phys. Chem.*, 1930, **5-6**, 403.
[3] Zelikoff, *Journ. Phys. Chem.*, 1953, **21**, 376.
[4] Billings, Hitchkook, Zelikoff, *Journ. Phys. Chem.*, 1953, **21**, 1762.
[5] McDonald et Gunning, *Journ. Phys. Chem.*, 1952, **20**, 1817.
[6] Perked et Gunning, *Journ. Phys. Chem.*, 1957, **26**, 1.
[7] Noyes, *Journ. Phys. Chem.*, 1931, **53**, 514.
[8] Nier, *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 450.
[9] Cojan (J. L.) et Lennuier (R.), *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 670.

STRUCTURE NUCLÉAIRE EN COUCHES ET FONCTIONS D'EXCITATION

Par Maurice-E. Nahmias,
Collège de France, Paris.

Ghoshal [1] a étudié le problème des divers modes de désintégration d'un noyau composé, le Zn64 excité, formé au cours des réactions suivantes :



Il trouva que les sections efficaces des réactions du type II sont quatre fois supérieures à celles des réactions du type I. Ceci confirmait une observation analogue de Strauch [2] qui trouva que les sections pour $^{34}_{30}$Zn(γ, pn) $^{33}_{29}$Cu sont 5 fois supérieures à celles de $^{34}_{30}$Zn(γ, 2n) $^{32}_{30}$Zn.

On peut également citer ici des résultats semblables obtenus par Kelly et Ségré [3] qui avaient trouvé une fonction d'excitation plus importante pour Bi(d, p)Ra*E* que pour Bi(d, n)Po.

Plusieurs hypothèses ont été suggérées pour expliquer ces apparentes « inversions » :

1) Les seuils des réactions comportant l'expulsion d'un proton sont inférieurs à ceux des réactions qui n'émettent que des neutrons.

2) Le noyau final radioactif des réactions avec émission d'un proton comme le $^{33}_{29}$Cu, est impair-impair et possède une densité de niveaux plus grande que celle des noyaux pair-pair, comme le $^{32}_{30}$Zn, des réactions du type I, sans émission de proton.

3) Si, dans les réactions du type II le proton et le neutron sont émis ensemble, sous forme d'un deuton, les seuils de ces réactions seraient diminués de 5 MeV par rapport [4] aux réactions du type I. A l'appui de la seconde hypothèse on peut citer l'expérience de Proctor et Voelker [5] qui trouvent que $^{3}_{3}$Li(γ, n) $^{2}_{3}$Li est favorisé par rapport à $^{3}_{3}$Li(γ, p) $^{2}_{3}$He. Les nucléides Li5 et He5 ayant chacun un nucléon célibataire ont la même densité de niveaux et par conséquent la réaction (γ, n) doit être cette fois normalement plus fréquente que la réaction (γ, p).

De même les résultats obtenus par Kelly et Ségré [3] sont également en faveur de cette explication, étant donné que le noyau final $^{126}_{84}$Po est doublement magique et possède moins de niveaux que le noyau final $^{127}_{83}$Ra*E*, impair-impair, auquel on peut accéder par un plus grand nombre de canaux de sortie, malgré la barrière de potentiel défavorable à l'expulsion d'un proton.

Pour évaluer toutefois la prépondérance de chacune de ces trois hypothèses on peut effectuer lesexpériences suivantes (voir tableau) :

Dans celles de Ghoshal le nucléide bombardé avec des particules α était le $^{32}_{28}$Ni qui est pair-pair. On pourrait irradier des nucléides impair-impair, comme $^{5}_{5}$B, $^{7}_{7}$N, $^{21}_{19}$K, $^{27}_{23}$V, $^{81}_{57}$La, ou même des nucléides radioactifs de longue vie comme le $^{33}_{27}$Co et le $^{79}_{55}$Cs. Malheureusement aucune de ces cibles, bombardées par des particules α, ne donne en (α, pn) et en (α, 2n) des noyaux radioactifs avec lesquels on puisse suivre les fonctions d'excitation. Il faudrait étudier, dans ces cas, les particules émises, comme dans les expériences de Proctor et Voelker [5].

Par contre les expériences avec des cibles de masse impaire sont plus accessibles. Ainsi avec une cible à *Z* impair et *N* pair on aurait :

avec (α, 2n) un noyau final radioactif F_I dont le *Z* sera impair et le *N* pair.

avec (α, pn) un noyau final radioactif F_{II} dont le *Z* sera pair et le *N* impair.

Dans les deux cas nous aboutissons à des nucléides impair-pair. On arrive à la même conclusion avec une cible ayant un *Z* pair et un *N* impair. Par conséquent, sauf complications, du fait des hypothèses 1 et 3, on devrait observer, avec des cibles de masse impaire, des résultats analogues à ceux de Proctor et Voelker [5] c'est-à-dire $\sigma_{F_I} > \sigma_{F_{II}}$.

J'ai choisi, d'une part des cibles ayant un bon pourcentage isotopique et d'autre part des réactions au cours desquelles les nucléides radioactifs formés ont des périodes accessibles.

Pour comparer les réactions (p, 2n) et (p, pn), on observera qu'il suffit de prendre, si disponibles, des cibles dont les *Z* soient supérieurs de une unité et les *N* de deux unités à ceux des cibles suggérées dans le tableau, pour les réactions avec les particules α de plus de 20 MeV. On aura ainsi, comme dans les expériences de Ghoshal, les mêmes noyaux composés et finaux.

Lettre reçue le 1er octobre 1958.

TABLEAU

Cl^{35}	α, 2n	K^{37}(β+ ; I, 3 sec)
	α, pn	^{37}(C. E. ; 35 j)
K^{39}	α, 2n	Sc^{41}(β+ ; 0,9 sec)
	α, pn	Ca^{41}(C. E. 10 000 a)
Cu^{63}	α, 2n	Ga^{65}(C. E. ; 15 m)
	α, pn	Zn^{65}(β+ ; 250 j)
Ga^{69}	α, 2n	As^{71}(C. E. 60 h)
	α, pn	Ge^{71}(C. E. 11 j)
Br^{79}	α, 2n	Rb^{81}(β+ ; 4,7 h)
	α, pn	Kr^{81}(C. E. 2 × 10^5 a)
Pd^{105}	α, 2n	Cd^{107}(C. E. β+ ; 6 h)
	α, pn	Ag^{107}(T. I. 44 sec)
Cd^{111}	α, 2n	Sn^{113}(C. E. 111 j)
	α, pn	In^{113}(T. I. 104 m)
Sb^{121} et ^{123}	α, 2n	I^{123} et I^{125} (C. E.)
	α, pn	Te^{123} et I^{125}(T. I.)
I^{127}	α, 2n	Cs^{129}(C. E. 31 h)
	α, pn	Xe^{129}(T. I. 8 j)
Cs^{133}	α, 2n	La^{135}(C. E. 19 h)
	α, pn	Ba^{135}(T. I. 28 h)
Au^{197}	α, 2n	Tl^{199}(C. E. 7 h)
	α, pn	Hg^{199}(T. I. 44 m)
Bi^{209}	α, 2n	^{211}At(α et C. E. 7,5 h)
	α, pn	^{211}Pb(α, 0,5 sec)

BIBLIOGRAPHIE

[1] *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 939.
[2] *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 241.
[3] *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 999.
[4] *Bull. Amer. Phys. Soc.* 1958, n° **3**, 174-E10.
[5] *Bull. Amer. Phys. Soc.* 1958, n° **3**, 173-E5.

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. — Dépôt légal : 4e trim. 1958. — Imp. TAFFIN-LEFORT, à Lille (France).